

**Temperaturabhängigkeit
der Kernquadrupolwechselwirkung
von ^{67}Ge und ^{67}Zn
in polyvalenten Metallen**

**INAUGURALDISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der
Freien Universität Berlin**

**vorgelegt von
Wolfhard Semmler
aus Zieserwitz/Schlesien**

April 1976

**Temperaturabhängigkeit
der Kernquadrupolwechselwirkung
von ^{67}Ge und ^{67}Zn
in polyvalenten Metallen**

INAUGURALDISSERTATION
zur Erlangung der Doktorwürde
der
Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Wolfhard Semmler
aus Zieserwitz/Schlesien

April 1976



Referent: Prof.Dr. E.Recknagel
Koreferent: Prof.Dr. K.-H.Lindenberger

Tag der mündlichen Prüfung: 7.Juli 1976



Digitized by the Internet Archive
in 2026

Diese Arbeit wurde am Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung GmbH, Bereich Kern- und Strahlenphysik, durchgeführt. Allen Mitgliedern des Bereichs sei an dieser Stelle gedankt. Mein besonderer Dank für Mithilfe, wertvolle Hinweise und Diskussionen gilt: A.Bader, W. Bartsch, C. Franke, H. Haas , B. Lamp, I. Lang, W. Leitz, K.-H. Lindenberger, H.-E. Mahnke, E. Recknagel, R. Sielemann und Th. Wichert.

Es sei auch allen denen gedankt, die durch manch' freundliches Wort - auch außerhalb der Physik - und hilfreiche Unterstützung den Spaß und die Freude an der Arbeit im Hause förderten.

Nicht zuletzt danke ich meiner Familie, die mich geduldig in den letzten Wochen ertrug.

Zusammenfassung:

Mit der Methode der gestörten Winkelverteilung nach Kernreaktionen wurde die Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten und die der Anfangsamplitude der Modulationsspektren in den nichtkubischen s-p-Metallen Zn, Cd, In und Sn untersucht. Als Sonden dienten die isomeren Zustände von ^{67}Ge ($\tau = 101 \text{ ns}$, $I^\pi = 9/2^+$, $E_\gamma = 734 \text{ keV}$) und ^{67}Zn ($\tau = 480 \text{ ns}$, $I^\pi = 9/2^+$, $E_\gamma = 604 \text{ keV}$), die über die Kernreaktion $^{64}\text{Zn}(\alpha, n)^{67}\text{Ge}$ und $^{64}\text{Ni}(\alpha, n)^{67}\text{Zn}$ erreicht wurden. Während am System $^{67}\text{GeZn}$ der isomere Zustand direkt im Zn-Target durch die (α, n) -Reaktion erzeugt werden konnte, mußten für die Messungen an den Systemen $^{67}\text{GeCd}$, $^{67}\text{GeIn}$, $^{67}\text{GeSn}$ und $^{67}\text{ZnCd}$ Mehrschichtentargets verwendet werden.

Die Meßergebnisse für die Quadrupolkopplungskonstante und die Anfangsanisotropie im Temperaturbereich von $T > 100 \text{ K}$ bis zum Schmelzpunkt der jeweiligen Matrix sind in den Tabellen VI.1 - VI.5 zusammengefaßt. Die Temperaturabhängigkeit folgt der $T^{1,5}$ -Relation. Abweichungen bei Temperaturen $T < 200 \text{ K}$ können auf Strahlenschäden zurückgeführt werden.

Für die ^{67}Ge -Sonde nimmt die Temperaturabhängigkeit in der Reihenfolge der Wirtsmatrizen Zn, Cd, Sn und In zu. Die Analyse von Literaturdaten bestätigt diese Beobachtung auch für andere Systeme. Die Stärke der Temperaturabhängigkeit zeigt eine Proportionalität zum Quadrat der reziproken Debyetemperatur des Wirtsgitters; besonders gut wird diese durch die "reinen" Systeme ZnZn , CdCd und InIn wiedergegeben. Die Proportionalität legt es nahe, Gitterschwingungen als wesentliche Ursache der Temperaturabhängigkeit des elektrischen Feldgradienten anzusehen.

Der Einfluß von Fremdatomsonden auf die Temperaturabhängigkeit wird untersucht. Gegenüber den "reinen" Systemen wird eine Ab- bzw. Zunahme der Stärke der Temperaturabhängigkeit beobachtet, die mit der effektiven Valenzdifferenz zwischen Wirtsgitter und Sondenatom korreliert ist.

Bei allen Systemen wird eine Restanisotropie für Temperaturen $T < 200$ K festgestellt. Diese Restanisotropie wird auf den Anteil der Sondenatome zurückgeführt, die keine Defektplätze einnehmen. Das thermisch aktivierte Ausheilverhalten der Defektplätze bestimmt die Zunahme der Anfangsanisotropie für höhere Temperaturen. Es wird dabei angenommen, daß sich die wesentlichen Ausheilvorgänge vor Beobachtungsbeginn abspielen.

Inhaltsverzeichnis

<u>1. Einleitung</u>	5
<u>2. Elektrische Feldgradienten in Metallen</u>	10
2.1. Über den elektrischen Feldgradienten - Grundlagen	10
2.2. Der elektrische Feldgradient in nichtkubischen Metallen	13
2.3. Der elektrische Feldgradient am Fremdatom	18
<u>3. Grundlagen der Meßmethode</u>	22
3.1. Die Methode der gestörten Winkelverteilung	22
3.2. Meß- und Auswertgleichungen	27
3.3. Kernphysikalische Eigenschaften der Sonden	30
<u>4. Experimentelle Durchführung</u>	35
4.1. Versuchsaufbau und -durchführung	35
4.2. Targetanordnung	37
4.3. Die Temperaturmessung und ihre Fehler	39
<u>5. Die Targets und ihre Präparation</u>	43
5.1. Der Einfluß der Probenart auf die Störfunktion	43
5.2. Die Zinktargets	46
5.3. Die Mehrschichtentargets	49
<u>6. Ergebnisse und Diskussion</u>	52
6.1. Ergebnisse der Messung	52
6.1.1. Ergebnisse der Messungen für $^{67}\text{GeZn}$	52
6.1.2. Ergebnisse der Messungen für ^{67}Ge in Cd, In und Sn	54
6.1.3. Ergebnisse der Messungen für $^{67}\text{ZnCd}$	61
6.2. Der Gitterplatz des Sondenatoms	63
6.3. Diskussion der Meßergebnisse	66

7.	<u>Vergleich der Temperaturabhängigkeiten</u>	71
7.1.	Ansätze zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit des EFG	71
7.2.	Analyse der gemessenen Temperaturabhängigkeiten	76
7.3.	Vergleich der Temperaturabhängigkeit des EFG in den Wirtsgittern Zn, Cd, In und Sn	83
7.4.	Der Einfluß des Fremdatoms auf die Temperaturabhängigkeit	86
7.5.	Zusammenfassung	90
8.	<u>Die Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie</u>	93
8.1.	Ergebnisse der Anpassungen	94
8.2.	Das Zeitverhalten der Umgebung des Sondenatoms nach dem Abbremsprozeß	96
8.3.	Vergleich der Ergebnisse mit Modellvorstellungen	99
8.4.	Diskussion der gemessenen Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie	102
	 Literaturverzeichnis	 109

1. Einleitung:

Messungen von Hyperfeinwechselwirkungen im Festkörper ermöglichen es, nähere Kenntnis der Elektronendichteverteilung zu erlangen. Beobachtet wird dabei die Wechselwirkung der Multipolmomente eines Sondenkerns mit der entsprechenden Multipolkomponente des elektromagnetischen Feldes, das im Festkörper am Sondenort wirkt.

Die Verwendung nichtmagnetischer, nichtkubischer Wirtsgitter ermöglicht es, exklusiv die elektrische Kernquadrupolwechselwirkung zu beobachten. Wechselwirkungen höherer Ordnung (Hexadekapolaufspaltung usw.) sind wegen der zu geringen Wechselwirkungsenergie nicht meßbar, die Wechselwirkung mit dem magnetischen Kerndipolmoment wird durch die Benutzung nichtmagnetischer Materialien unterdrückt.

Meßgröße bei der Kernquadrupolwechselwirkung ist das Produkt aus dem elektrischen Quadrupolmoment des Sondenkerns und dem elektrischen Feldgradienten (EFG), die sogenannte Kernquadrupolkopplungskonstante. Im allgemeinen ist das Quadrupolmoment nicht bekannt, sodaß der EFG nicht direkt bestimmt werden kann.

Quelle des elektrischen Feldgradienten sind die mit geringerer als kubischer Symmetrie angeordneten Ionen eines Kristallgitters. Die im Metallgitter frei beweglichen Leitungselektronen tragen unter dem Einfluß des EFG der Ionenrümpfe zum EFG am Sondenort bei. Diese EFG-Beiträge induzieren eine Umverteilung der Rumpfelektronen, die ihrerseits dann ebenfalls einen Beitrag zum resultierenden EFG leisten.

Welcher der Beiträge zum EFG in Metallen der dominierende ist, konnte durch die Messung der Temperaturabhängigkeit des EFG von $^{113,115}\text{InIn}^{1)}$, $^{67}\text{ZnZn}^{2)}$ und $^{111}\text{CdCd}^{3,4)}$ gezeigt werden. Der Temperaturgang des Gitteranteils von CdCd sowie ZnZn und der gemessene unterscheiden sich sowohl im Vorzeichen als auch im Betrag. Das Vorzeichen der Wechselwirkung von CdCd wurde dabei im Experiment bestimmt⁵⁾, für ZnZn analog dem in CdCd angenommen²⁾. Bei den s-p-Metallen macht - soweit experimentell be-

kannt - lediglich In eine Ausnahme, bei dem der Gitteranteil und der experimentell bestimmte EFG gleiche Vorzeichen haben⁶⁾. Es ist für die hier erwähnten Messungen festgestellt, daß der Beitrag des Punktgitters allein den Betrag des EFG und dessen Temperaturgang nicht beschreiben kann.

Die weitgehend lokalisierten f- bzw. d-Elektronen der unaufgefüllten Schalen in den Übergangsmetallen leisten einen zusätzlichen Beitrag zum EFG und dessen Temperaturabhängigkeit, wie er zum Beispiel an dem System $TmTm$ ⁷⁾ beobachtet wurde. Werden Übergangsmetalle als Kernsonden verwendet, wird ebenfalls ein weiterer Beitrag zu den oben genannten festgestellt⁸⁾.

Um möglichst einfache Verhältnisse für die Interpretation der Temperaturabhängigkeit vorzufinden, wird in der vorliegenden Arbeit die elektrische Quadrupolwechselwirkung nur in den s-p-Metallen untersucht.

Die in dieser Arbeit verwendete Methode der gestörten Winkelverteilung (DPAD)⁺ gestattet es, auf sehr einfache Weise den EFG an verschiedenen Sondenatomen in einer speziellen Matrix bei sehr hoher Verdünnung (ca. 10^{-8}) zu studieren. Die Erzeugung der Sondenatome erfolgt über eine Kernreaktion direkt in der Matrix. Durch die Auswahl einer geeigneten Kernreaktion ist es möglich, verschiedene Sonden in einer Matrix zu beobachten. Die Methode der Rückstoßimplantation in Verbindung mit Mehrschichtentargets ermöglicht es, unabhängig von der Kernreaktion nahezu frei in der Wahl der Matrix zu sein. Damit eröffnet sich ein weites Feld zum systematischen und vergleichenden Studium der Kernquadrupolwechselwirkung und deren Temperaturabhängigkeit.

Die Benutzung eines Fremdatoms als Sonde hat aber eine Störung der Ladungs- und Gittersymmetrie zur Folge. Daraus kann

⁺ (Time) Differential Perturbed Angular Distribution

sowohl eine Änderung des Betrages des EFG als auch eine Änderung von dessen Temperaturabhängigkeit resultieren. Erstmals wurden deutlich solche Unterschiede im Temperaturgang der Systeme TaTi - CdTi⁹⁾ in den Übergangsmetallen und für GeZn - ZnZn^{10,2)} in den s-p-Metallen beobachtet. Dadurch wird die Annahme unterstützt, daß der EFG - abgesehen von einem unterschiedlichen Sternheimerfaktor γ_{∞} - nicht nur durch das Wirtsgitter bestimmt wird; Quadrupolmomente, die durch einen Vergleich der Wechselwirkungsstärke verschiedener Sondenatome unterschiedlicher Valenz in gleicher Wirtsmatrix berechnet wurden, erscheinen daher zweifelhaft.

Weder für die Temperaturabhängigkeit im reinen System noch für den "Fremdatomeffekt" gibt es bisher geschlossene Modellvorstellungen, die diese Beobachtungen erklären können. Ausweg aus dieser Situation können Messungen der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung für eine große Zahl von Systemen bieten, die dann die Möglichkeit erschließen, systematische Veränderungen der Observablen zu erkennen und somit Lösungsansätze zu erleichtern. Die von Heubes und Mitarbeitern¹¹⁾ angegebene empirische $T^{3/2}$ -Relation, die einen großen Teil der bisher gemessenen Temperaturabhängigkeiten des EFG beschreibt, zeigt, daß diese Methode zum Erfolg führen kann. Auch im Falle des "Fremdatomeffektes" können systematische Untersuchungen - wie im Verlaufe dieser Arbeit noch gezeigt werden wird - einen Hinweis zum besseren Verständnis des EFG in nichtkubischen Metallen geben.

Die Anwendung der Methode der gestörten Winkelverteilung beinhaltet, daß durch das Rückstoßatom und eventuell auch durch den Primärstrahl Strahlenschäden des zu untersuchenden Wirtsgitters verursacht werden. Dadurch kann in kubischen Gittern ein EFG induziert bzw. bei nichtkubischen Gittern eine Veränderung des gittertypischen EFG hervorgerufen werden. Die

Strahlenschäden selbst und/oder ihr dynamisches Verhalten während der Zeit der Lebensdauer des isomeren Kernniveaus führen zu einer quadrupolaren Störwechselwirkung, die i.a. zu einer Abschwächung der Modulationsamplitude (Relaxation und/oder Abnahme der Anfangsanisotropie) führt.

Essentiell für den Vergleich von Kopplungskonstanten verschiedener Sondenatome in einer Wirtsmatrix ist die Annahme, daß die Sondenatome substitutionelle Gitterplätze einnehmen. Wie Kaufmann und Mitarbeiter¹²⁾ zeigen, ist diese Annahme selbst für PAC⁺-Experimente nach Temperung, wenn verschiedene Mutterisotope benutzt werden, nicht immer gerechtfertigt, d.h. in jedem speziellen Fall muß diese Annahme überprüft werden; insbesondere auch für die DPAD-Experimente, bei denen das Rückstoßatom am Ende einer Stoßkaskade in einer stark gestörten Umgebung zur Ruhe kommt.

Diese, auf die Meßmethode zurückzuführenden Sekundäreffekte erschweren einerseits die Analyse der Meßergebnisse, zum anderen ergeben sie aber zusätzliche neue Information über das Verhalten von Defekten in Festkörpern - z.B. über die Dynamik der Fehlstellen.

In der vorliegenden Arbeit werden die Ergebnisse der Messungen der Temperaturabhängigkeit der Kopplungskonstanten für die Sonde ⁶⁷Ge in den Matrizen Zn, Cd, In und Sn und für ⁶⁷Zn in Cd vorgestellt und diskutiert.

In Abschnitt 2 und 3 dieser Arbeit werden die Grundlagen zum Verständnis der Experimente erläutert; Abschnitt 2 behandelt den EFG in nichtkubischen Metallen, und in Abschnitt 3 werden die Grundlagen der DPAD-Meßmethode beschrieben und die Meßgleichung wiedergegeben. Die experimentelle Durchführung wird in Abschnitt 4, die Präparation der Targets in Abschnitt 5 beschrieben. Die Ergebnisse der verschiedenen Meßreihen sind in Abschnitt 6 zusammengefaßt. In Abschnitt 7 wird versucht,

⁺ (Time Differential) Perturbed Angular Correlation

eine Interpretation der gemessenen unterschiedlichen Änderung in der Stärke der Quadrupolwechselwirkung als Funktion der Temperatur für verschiedene Wirtsgitter und Sondenkerne zu erarbeiten. Abschnitt 8 behandelt die in allen Messungen beobachtete Abnahme der Anfangsanisotropie als Funktion der Temperatur.

2. Elektrische Feldgradienten in Metallen

Eine geschlossene theoretische Beschreibung des EFG in Metallen existiert bisher noch nicht. Keine der im folgenden erwähnten Modellvorstellungen ist geeignet, den EFG dem Betrage und dem Vorzeichen nach für eine größere Anzahl von Metallen richtig wiederzugeben. Dazu wäre es notwendig, die Dichteverteilung $\rho_e = 2 \sum |\psi_{\mathbf{nk}}(\vec{r})|^2$ der Elektronen in den einzelnen Bändern genau zu kennen, d.h. die Wellenfunktionen aller besetzten Zustände $\vec{k}$ innerhalb des Fermivolumens müssen bekannt sein. Für die hier in Betracht kommenden Metalle können keine Wellenfunktionen angegeben werden. Die Messungen der Knight-shift, Ultraviolettphotoemissionsspektroskopie, Röntgenstrahlphotoemissionsspektroskopie u.a. geben häufig nur ein unvollständiges Bild der Elektronenverteilung ρ_e . Die zusätzlich eingebrachte Ladung durch ein Fremdatom und die Störungen des gittertypischen Feldgradienten durch Strahlenschäden bringen zusätzliche Komplikationen.

In diesem Abschnitt werden - soweit hier zum Verständnis notwendig - die Quellen des EFG beschrieben und verschiedene Modellvorstellungen zu ihrer Beschreibung erläutert, die später bei der Diskussion der Meßergebnisse benötigt werden. Ausführliche Darstellungen zum Abschnitt 2.1 findet man z.B. bei Matthias und Mitarbeitern¹³⁾, für Abschnitt 2.2 bei Pelzl¹⁴⁾.

2.1. Über den elektrischen Feldgradienten - Grundlagen

Die statische elektrische Quadrupol-Wechselwirkung wird durch den Hamiltonoperator

$$H_{el} = \int \rho(\vec{r}_N) V(\vec{r}_N - \vec{r}_e) d\tau \quad (2.1)$$

beschrieben, wobei $\rho(\vec{r}_N)$ die Ladungsdichte im Kern beschreibt und $V(|\vec{r}_N - \vec{r}_e|)$ das Potential ist, das durch die gesamte Ladungsverteilung außerhalb des Kernvolumens τ erzeugt wird. Dieses Integral kann unter der Voraussetzung diskreter Ladungen durch eine Summation ersetzt werden:

$$H_{el} = \sum_{N,e} \frac{e_N \cdot e_e}{|\vec{r}_N - \vec{r}_e|} \quad (2.2)$$

Entwicklung des Faktors $1/(|\vec{r}_N - \vec{r}_e|)$ in eine Taylorreihe außerhalb des Kerns, d.h. für $r_e > r_N$ ergibt:

$$1/|\vec{r}_N - \vec{r}_e| = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{r_N^k}{r_e^{k+1}} P_k(\cos(\vec{r}_N, \vec{r}_e)) \quad (2.3)$$

unter Verwendung des Additionstheorems der Kugelfunktionen (Die Winkel $\psi_{N,e}$, $\varphi_{N,e}$ bezeichnen dabei die Lage der Punktladungen des Kerns bzw. der Ionen im Kristall.)

$$[1/(2k+1)!] 4\pi P_k(\cos \phi) = \sum_{m=-k}^k Y_k^m(\psi_N, \varphi_N) Y_k^m(\psi_e, \varphi_e)$$

erhält man für (2.2):

$$H_{el} = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{4\pi}{2k+1} \sum_{q=-k}^k (-1)^q \sum_N e_N r_N^k Y_k^q(\psi_N, \varphi_N) \sum_e \frac{e_e}{r_e^{k+1}} Y_k^{-q}(\psi_e, \varphi_e) \quad (2.4)$$

Wegen der Spiegelinvarianz der Wechselwirkung brauchen nur in k gerade Terme betrachtet zu werden; die Terme mit der Multipolkomponente $k=4$ (und größer) werden vernachlässigt, weil sich die Hexadekupolaufspaltung der Beobachtung entzieht (< 1 Hz), der Term für $k=0$ ist die Coulombwechselwirkung, die nur insgesamt eine energetische Verschiebung hervorruft. Damit reduziert sich der Hamiltonoperator der elektrischen Wechselwirkung (2.4) auf die Komponente $k=2$ (elektrische Quadrupolwechselwirkung). Die Entwicklung nach Kugelflächenfunktionen ermöglicht die Faktorisierung des Hamiltonoperators in einen Kernanteil:

$$T_q^{(2)} = \sum_N e_N r_N^2 Y_2^q(\psi_N, \varphi_N) \quad (2.5)$$

und einen Anteil des externen Feldes:

$$V_q^{(2)} = \sum_e e_e \frac{1}{r_e^3} Y_2^q(r_e^2, \theta_e) \quad (2.6)$$

Der symmetrische Tensor des elektrischen Feldgradienten hat im kartesischen Koordinatensystem 6 Komponenten, die sich wegen der Laplace-Gleichung $\sum V_{ij} \delta_{ij} = 0$, $[\nabla_{ij} = \frac{\partial^2 V}{\partial x_i \partial x_j} (x_i = x, y, z)]$ auf 5 unabhängige Komponenten reduzieren; im geeigneten Koordinatensystem (Hauptachsensystem) gilt:

$$\begin{aligned} V_o^{(2)} &= \frac{1}{4} \sqrt{\frac{5}{\pi}} V_{22} \\ V_{\pm 2}^{(2)} &= 0 \\ V_{\pm 2}^{(2)} &= \frac{1}{4} \sqrt{\frac{5}{\pi}} \eta \cdot V_{22} \end{aligned} \quad (2.7)$$

mit η als Asymmetrieparameter $\eta = (V_{xx} - V_{yy})/V_{zz}$

$$(|V_{xx}| \leq |V_{yy}| \leq |V_{zz}| \Rightarrow 0 \leq \eta \leq 1)$$

Setzt man einen axialsymmetrischen Feldgradienten ($\eta = 0$) voraus, wird der EFG vollständig durch den Skalar $V_{zz} \equiv eq$ beschrieben. Der Hamiltonoperator (2.4) reduziert sich dann unter Verwendung der Gleichungen (2.5)-(2.7) im Hauptachsensystem auf:

$$H_{el} = \sqrt{\frac{\pi}{5}} T_o^{(2)} V_{22} \quad (2.8)$$

Für einen gegebenen Spin I und die magnetischen Subzustände m, m' erhält man für die Eigenwerte des Hamiltonoperators

$$E_m = \langle I m | H_{el} | I m \rangle = \sqrt{\frac{\pi}{5}} \langle I m | T_o^{(2)} | I m \rangle V_{22} \quad (2.9)$$

Berücksichtigt man die Definition des Quadrupolmoments

$$eq = \langle II | \sum_N e_N (3z_N^2 - r_N^2) | II \rangle$$

so erhält man als Energieeigenwerte für die Subzustände:

$$E_m = \frac{3m^2 - I(I+1)}{4I(2I-1)} e^2 q q \quad (2.10)$$

Für die Energiedifferenz der in m^2 entarteten Zustände gilt dann:

$$E_m - E_{m'} = \hbar \omega_0 = 3(m^2 - m'^2) \frac{e^2 Q q}{4I(2I-1)} \quad (2.11)$$

Die spinunabhängige Kopplungskonstante der elektrischen Quadrupolwechselwirkung wird folgendermaßen definiert:

$$\nu_Q = \frac{e^2 Q q}{h} \quad (2.12)$$

Der Vollständigkeit halber soll noch die Definition der spinabhängigen "Quadrupolfrequenz" angeführt werden:

$$\omega_Q = \frac{e^2 Q q}{4I(2I-1)\hbar} \quad (2.13)$$

Die beobachtete kleinste Frequenz ist:

$$\omega_0 = n\omega_Q$$

mit $n=3$ für ganzzahlige und $n=6$ für halbzahlige Spins.

2.2. Der elektrische Feldgradient in nichtkubischen Metallen

Der elektrische Feldgradient ist nach den Gleichungen (2.7) durch Angabe zweier Parameter charakterisiert: $V_{zz} = eq$ und η . Der Feldgradient am Aufpunkt eines Sondenatoms ist gegeben durch die Gleichung ($\eta = 0$):

$$eq = \int \rho_e(\vec{r}_e) \vec{r}_e^{-3} 2\vec{r}_e (\cos \theta) d\vec{r}_e \quad (2.14)$$

die man aus (2.7) und (2.6) erhält, wobei die Summation durch das Integral ersetzt wurde. Die Lösung des Integrals erfordert die Kenntnis der Ladungsverteilung $\rho_e(\vec{r}_e)$ im Gitterverband des Kristalls, die man sich einerseits aus den positiven Ionenrümpfen des Metallgitters und andererseits durch die Elektronen - sowohl Leitungselektronen als auch lokalisierte Elektro-

nen - zusammengesetzt vorstellt. Diese Parametrisierung der Ladungsverteilung im Metall bleibt willkürlich und läßt sich nur dadurch rechtfertigen, daß es mit Hilfe dieser Methode gelingt, wenigstens einige Anteile des EFG zu berechnen. Wie später in Abschnitt 7 noch diskutiert wird, lassen die gemessenen Temperaturabhängigkeiten der Quadrupolwechselwirkung diese Parametrisierung zweifelhaft erscheinen; sie kann aber nicht widerlegt werden.

Gemäß der oben genannten Vorstellung wird der EFG allgemein folgendermaßen aufgeteilt^{14,15}):

(1) Der Gitterbeitrag (eq_{latt})

Dieser Beitrag ist der direkte Beitrag zum EFG, der von den positiven Ionenrümpfen des Metallgitters und einer als gleichförmig angesehenen Verteilung der Leitungselektronen im Gitter geleistet wird. (Beiträge, die durch Abweichungen von diesen Gleichverteilungen hervorgerufen werden, müssen gesondert berücksichtigt werden, s.u.).

Die Ladungsverteilung eines solchen Gitters ist nach Referenz^{16,17}) (i = Index des Aufatoms):

$$\rho(\vec{r}) = \rho_e + Ze \sum_{\lambda} \delta(\vec{r} - \vec{r}_{\lambda}) \quad (\lambda + i) \quad (2.15)$$

Der erste Summand bezeichnet den Betrag von der gleichförmigen Elektronenverteilung und ist wegen der Ladungsneutralität der Einheitszelle als $\rho_e = -Ze/V$ (V = Volumen der Einheitszelle) anzusetzen; der zweite Summand bestimmt den Anteil der z -fach geladenen Ionen des Gitters. Durch Einsetzen von (2.15) in (2.14) erhält man den EFG des Gitters:

$$eq_{latt} = - \frac{Ze}{V} \int \frac{2 P_2(\cos \theta)}{r^3} d\tau + Ze \sum_{\lambda} \frac{2 P_2(\cos \theta)}{r_{\lambda}^3} \quad (2.16)$$

Durch eine spezielle Summationstechnik (ebenenweise Summation) kann die Summe ausgeführt werden; das Integral liefert

lediglich den Betrag $-\frac{8}{3}\pi$. Die Ergebnisse für hcp⁺ und tetragonale Gitter sind in Referenz¹⁶⁾ tabelliert. Das und Pomerantz¹⁸⁾ geben für hcp-Metalle einen geschlossenen Ausdruck an:

$$e\eta_{\text{caH}} = 2 \cdot e (0,0065 - 4,3584 (c/a - 1,633)) / a^3 \quad (2.17)$$

Die so berechneten Gitteranteile sind für die hier betrachteten Metalle zu klein (vergl. z.B. Ref. 1,2)

(2) Der Leitungselektronenbeitrag ($eq_{\text{CE}}^{\text{in}}$)

Dieser Beitrag zum EFG wird von den Leitungselektronen innerhalb der Wigner-Seitz-Zelle in der sich das Sondenatom befindet geleistet. Die Aufteilung in den Innen- und Außenraum ist willkürlich und wird durch die zur Berechnung dieses Beitrages verwendete Methode bestimmt, z.B. benutzen Lodge und Sholl¹⁵⁾ gegenüber Watson und Mitarbeitern¹⁹⁾ eine etwas andere Aufteilung, die wegen der benutzten Pseudopotentialtheorie günstiger ist. Es müssen bei der Berechnung dieses EFG-Beitrages grundsätzlich zwei Ansätze unterschieden werden:

- a) Bei der Berechnung von $eq_{\text{CE}}^{\text{in}}$ werden alle Elektronen im gesamten k-Raum berücksichtigt.
- b) Es werden nur die Leitungselektronen an der Fermikante in die Betrachtung einbezogen.

(zu a) Detaillierte Rechnungen für den Leitungselektronenanteil des EFG - wobei der Anteil aller Elektronen innerhalb des Fermivolumens berücksichtigt wird - ergeben unter Berücksichtigung des Gitteranteils für die Metalle Be und Mg gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen (Ref. 20 und Ref. darin) für die Metalle Zn und Cd erhält man keine befriedigenden Ergebnisse. Bei den Berechnungen des EFG in Be und Mg wurden lo-

⁺ hexagonal closed packed

kale Potentiale und als Wellenfunktionen Bandwellenfunktionen der Leitungselektronen benutzt, hingegen sind für Zn und Cd weder realistische Potentiale noch Wellenfunktionen bekannt. Deshalb wurden Pseudopotentiale benutzt, um Pseudowellenfunktionen zu erstellen, die wiederum zur Berechnung der tatsächlichen Wellenfunktionen verwendet werden. Mit Hilfe der so erhaltenen Wellenfunktionen werden dann nach gleicher Methode wie für Be und Mg die Beiträge der verschiedenen Bänder zum EFG berechnet. Damit ist ein Test für die Pseudopotentiale gegeben.

Zweifel bleiben aber auch bei den Ergebnissen für Be und Mg bestehen, da die Beiträge der einzelnen Bänder im Vergleich zum berechneten totalen Feldgradienten groß sind und sich gegenseitig nahezu aufheben.

(zu b) Watson und Mitarbeiter schreiben den EFG-Beitrag der Leitungselektronen eq_{CE}^{in} im Innenraum als Summe dreier Terme:

$$eq_{CE}^{in} = eq^0 + eq' + eq'' \quad (2.18)$$

wobei eq' der Anteil, der durch die Änderung der Besetzungszahlen in der Nähe der Fermioberfläche hervorgerufen wird, den Hauptteil zu eq_{CE}^{in} leistet. Dieser Anteil wird beschrieben durch die Gleichung

$$eq' \approx -2e^2 q_{latt} n(E_F) \sum_l f_l \langle r^2 \rangle_l \langle r^{-3} \rangle_l (\langle r^2 \cos \theta \rangle_l)^2 \quad (2.19)$$

mit $n(E_F)$ = Zustandsdichte an der Fermikante, f_l = Anteil der Elektronen mit einem Bahndrehimpuls l und $\langle r^2 \rangle_l \langle r^{-3} \rangle_l$ = Erwartungswerte der Elektronenradialverteilung. Die mit q_{latt} multiplizierten Faktoren sind alle positiv, woraus folgt:

$$\text{sign } q' = -\text{sign } q_{latt}$$

Die Elektronen schirmen also innerhalb der Wigner-Seitz-Zelle den vom Gitter erzeugten EFG ab. Die Autoren stellen für die hier in Frage kommenden Metalle ein "Overshielding" von 100-170 fest.

Es soll hier darauf aufmerksam gemacht werden, daß die Zustandsdichte der Elektronen an der Fermikante durch Fremdatome und andere Gitterstörungen verändert werden kann, und damit proportional wird der EFG verändert, wenn nur die Änderung der Dichte konstant über die gesamte Fermioberfläche erfolgt.

(3) Leitungselektronenbeitrag ($e q_{CE}^{ext}$)

Die Leitungselektronen im Außenraum leisten ebenfalls einen Beitrag zum EFG. Dieser Anteil wird nach Das und Ray²¹⁾ proportional zum Gitteranteil angesetzt:

$$e q_{CE}^{ext} = e q_{eff} \sigma$$

und kann als eine erhöhte effektive Ladung der Ionenrümpfe angesehen werden, die durch die Nichtgleichverteilung der Leitungselektronen im Außenraum hervorgerufen wird. Der Faktor σ , charakteristisch für das jeweilige Gitter, ist nur einige Prozent groß und wird im allgemeinen vernachlässigt (vergl. z.B. Ref. 22).

(4) Abschirmung (Sternheimerfaktoren)

Unter dem Einfluß der oben genannten EFG Beiträge erfolgt eine Umverteilung der Rumpfelektronen. Üblicherweise wird dies durch die Sternheimerfaktoren berücksichtigt, die hier für den Gitteranteil als $(1-\gamma_{\infty})$ und für den Leitungselektronenbeitrag mit $(1-R_{CE})$ bezeichnet werden sollen. Während $(1-R_{CE})$ ungefähr 1 ist und damit bei der gegebenen Genauigkeit vernachlässigt werden kann, gilt für den Sternheimerfaktor $(1-\gamma_{\infty}) \gg 1$. Für die Metalle sind die Sternheimerfaktoren meist nicht bekannt, deshalb werden die Werte für atomare Systeme verwendet (z.B. Feiock und Johnson²³⁾, Das und Pomerantz¹⁸⁾). Pelzl¹⁴⁾ schätzt das Verhältnis der Sternheimerfaktoren in Übergangsmetallen γ'_{∞}

zu dem im freien Ion γ_{∞} zu 1,4 ab. Dies kennzeichnet etwa den Fehler, der durch die Verwendung der atomaren Sternheimerfaktoren hervorgerufen wird.

Für den totalen EFG am Sondenort in den s-p-Metallen erhält man unter Berücksichtigung der Anteile (1)-(4):

$$eq = eq_{\text{stat}} (1 - \gamma_{\infty}) (1 + \delta) + eq_{\text{CE}}^{\text{int}} (1 - R_{\text{CE}}) \quad (2.20)$$

2.3. Der elektrische Feldgradient am Fremdatom

In der vorliegenden Arbeit wird an den Sonden ^{67}Ge und ^{67}Zn gemessen, die in verschiedene Wirtsgitter implantiert wurden.

Die Störung, die das Fremdatom im Wirtsgitter darstellt, wird in zwei Anteile zerlegt:

(1) die Störung der Ladungsverteilung ρ_e durch das Fremdatom aufgrund der unterschiedlichen Elektronenstruktur und Kernladung von Fremdatom und Wirtsatomen.

(2) Störung der Gitterstruktur durch unterschiedliche Größe von Wirts- und Fremdatomen, d.h. lokale Gitterverzerrungen um das Sondenatom.

(zu 1) In Übereinstimmung mit den theoretischen Rechnungen von Kohn und Vosko²⁴⁾ konnte Rowland²⁵⁾ zeigen, daß der EFG in der Umgebung eines Fremdatoms im kubischen Cu-Gitter von der Valenzdifferenz zwischen Fremdatom und Wirtsgitteratomen abhängt. Wie G.Schnakenberg und R.T.Schumacher²⁶⁾ in neueren Messungen feststellen, gilt dies jedoch nur für den von Fremdatomen außerhalb der 1.Schale um das Sondenatom erzeugten EFG.

Für größere Radien r , d.h. außerhalb der Wigner-Seitz-Zelle, erhalten Kohn und Vosko in Anlehnung an den Ansatz von Friedel²⁷⁾

- bei Verwendung von Bloch-Funktionen anstelle von ebenen Wellen - für den EFG:

$$q = \alpha \frac{8\pi}{3} A \frac{\cos(2k_F r_n + \varphi)}{r_n^3} \quad (2.21)$$

wobei A und φ durch die Phasenverschiebung $\eta(k_F)$ gegeben sind, r_n gibt den Ort des Nachbaratoms an, und α ist ein Verstärkungsfaktor.

In erster Linie interessiert hier - wegen der angewandten Meßmethode und der hohen Verdünnung der Fremdatome ($\approx 10^{-8}$) - aber nicht der EFG, der ausserhalb der Wigner-Seitz-Zelle durch das Fremdatom erzeugt wird, sondern der EFG am Orte des Fremdatomkerns. Gleichung (2.21) wird erst im Zusammenhang mit den Strahlenschäden interessieren.

Bisher existieren keine expliziten Rechnungen für die Störung $\Delta\rho_{CE}$ der Elektronendichte ρ_{CE} für den Bereich innerhalb der Wigner-Seitz-Zelle, da aber die Leitungselektronendichten den Hauptteil des EFG ausmacht, ist gerade diese Störung von besonderer Bedeutung.

Wie Mott²⁸⁾ zuerst folgerte, sollte die Ladungsabschirmung der Valenzdifferenz zwischen Fremdatom und Wirtsatom durch Leitungselektronen innerhalb atomarer Abstände erfolgen, weil in Metallen weitreichende elektrische Felder nicht existent sein können. Abschätzungen bei Flynn²⁹⁾ bestätigen dies. Innerhalb der Wigner-Seitz-Zelle kommt es also zu Änderungen der Elektronendichte, die von der Valenzdifferenz abhängig sein müssen.

Rigert und Flynn³⁰⁾ schreiben für die Zustandsdichte der vom Fremdatom zusätzlich eingeführten Fremdatomwellenzustände in der Umgebung des Fremdatoms:

$$\Delta n_e(k) = \frac{2}{\pi} (2\ell+1) \frac{d\eta_c/dk}{k} \quad (2.22)$$

Damit erhält man eine Beziehung zwischen der Änderung der Streuphase η_{ℓ} , die durch die Friedel'sche Streutheorie beschrieben wird, und der Änderung der Zustandsdichte $\Delta n_{\ell}(k)$ in der Fremdatomzelle als Funktion des Wellenvektors $\vec{k}$ und des Drehimpulses ℓ der gestreuten Elektronen.

Eine wesentliche Schlußfolgerung aus der Streutheorie ist die Friedel'sche Summenregel²⁷⁾

$$\Delta Z = \frac{2}{\pi} \sum_{\ell} (2\ell+1) \eta_{\ell}(k_F) \quad (2.23)$$

die wiederum einen einfachen Zusammenhang zwischen der Valenzdifferenz und der Streuphase der Wellenzustände mit dem Drehimpuls ℓ an der Fermikante herstellt.

Die durch Gleichung (2.22) beschriebene Änderung der Zustandsdichte ändert damit auch den EFG nach Gleichung (2.19). Vernachlässigt man die Änderung der Erwartungswerte der Elektronenradialverteilung $\langle r^2 \rangle_{\ell} \langle r^3 \rangle_{\ell}$, so ist die Änderung des EFG explizit von der Änderung der durch das Fremdatom gestörten Zustandsdichte an der Fermikante abhängig.

Folgt man der Argumentation bei Sielemann³¹⁾, so kann man bei Berücksichtigung nur der $\ell=1$ Drehimpulskomponenten die Änderung der Phasenverschiebung an der Fermikante als Funktion der Wertigkeitsdifferenz angeben. Abb. 2.1 aus Ref. 31 stellt den schematischen Verlauf von $d\eta_1/dk$ als Funktion der Wertigkeitsdifferenz dar. Dieser Verlauf sollte sich entsprechend Gleichung (2.19) in einer Änderung des EFG für Fremdatome verschiedener Wertigkeit in einer gegebenen Wirtsmatrix widerspiegeln, wenn man voraussetzt, daß $eq_{latt} \ll eq_{CE}$ ist.

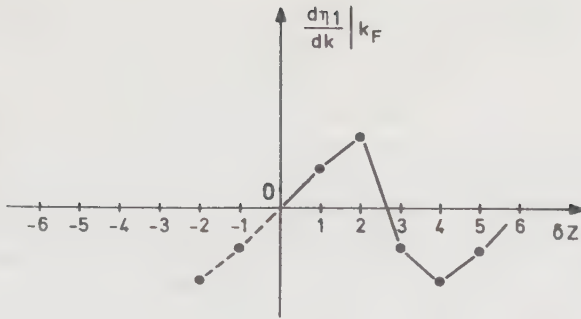


Abb. 2.1:

Ableitung der Phasenverschiebung η_1 an der Fermikante
als Funktion von δZ (schematisch) (nach Ref. 31)

(zu 2) Durch das mit einem unterschiedlichen Atomvolumen ins Gitter eingebaute Fremdatom wird sich zwangsläufig die besetzte Einheitszelle ihrer Größe nach ändern und damit auch die Anzahl der zur Abschirmung zur Verfügung stehenden Elektronen. Anschaulich kann man sich das folgendermaßen vorstellen³²⁾: Die mittlere Ladungsdichte innerhalb des Kristalls sei Z_0/V_0 (Z = Valenz, V = Atomvolumen, der Index "0" bezieht sich auf das ungestörte Wirtsgitter), so werden innerhalb der vom Fremdatom besetzten Einheitszelle, deren Volumen $V = V_0(1+\beta)$ sei, entsprechend $Z_0(1+\beta)$ Elektronen vorhanden sein, die die Überschußladung abschirmen können. Man erhält also:

$$\delta Z = Z - Z_0(1+\beta) \quad (2.24)$$

wobei β nach Referenz 33 für anisotrope Materialien, wie z.B. Zn, folgende Form hat:

$$\beta = \frac{1}{3} \cdot \frac{1+\sigma}{1-\sigma} \cdot \left(\frac{V-V_0}{V_0} \right) \quad (2.25)$$

mit σ als Poissonverhältnis. Eine notwendige Voraussetzung für diesen Ansatz ist die Annahme, daß die Fermienergie bei Einführung des Fremdatoms nicht beeinflusst wird.

3. Grundlagen der Meßmethode

Die bei den Messungen verwendete Meßmethode ist die der gestörten Winkelverteilung nach Kernreaktion (DPAD). Diese Methode unterscheidet sich im Prinzip nur in der Erzeugung eines ausgerichteten Kernensembles von der Methode der gestörten Winkelkorrelation (PAC). Der mathematische Formalismus für die Beschreibung der PAC kann deshalb auch auf die Methode der gestörten Winkelverteilung übertragen werden. Ausführlich wurde diese Theorie in Arbeiten von Alder und Mitarbeitern^{34,35)} sowie von Frauenfelder und Steffen³⁶⁾ dargestellt. Deshalb werden im folgenden Abschnitt die Rechnungen nur skizziert.

3.1. Die Methode der gestörten Winkelverteilung

Durch die Kernreaktion wird ein angeregtes isomeres Niveau, charakterisiert durch den Spin I mit den Subzuständen m_a und die Lebensdauer τ_N , erreicht. Wählt man als Quantisierungsachse die Ausbreitungsrichtung des gepulsten Teilchenstrahls, so wird das ausgerichtete Spinsystem durch die in diesem Falle für die Subzustände m_a und $-m_a$ gleichen Diagonalelemente der Dichtematrix $\langle m_a | \rho_a(k_1) | m'_a \rangle = P_{m_a} \cdot \delta_{m_a m'_a}$ beschrieben, die die Besetzungswahrscheinlichkeiten der einzelnen Subzustände angeben.

Findet während der Lebensdauer τ_N des isomeren Niveaus eine Wechselwirkung mit äußeren Feldern statt, so erfolgt eine Umbesetzung der einzelnen Subzustände, die sich in einer Änderung der Dichtematrix äußert.

Dieser Vorgang wird durch den zeitabhängigen Entwicklungsoperator $\Lambda(t)$ beschrieben:

$$\rho_a(k_1) \xrightarrow{\Lambda(t)} \rho_b(k_1)$$

Der Operator $\Lambda(t)$ genügt der Schrödingergleichung:

$$-\frac{\partial}{\partial t} \Lambda(t) = \frac{i}{\hbar} H_{el} \Lambda(t) \quad (3.1)$$

Bei nachfolgender Emission von elektromagnetischer Multipolstrahlung wird diese im allgemeinen anisotrop sein. Wegen der zeitlichen Änderung der Dichtematrix wird die Korrelationsfunktion zeitabhängig. Diese allgemeine zeitabhängige Korrelationsfunktion zwischen der Richtung $\vec{k}_1$, die durch die Richtung des Teilchenstrahls gegeben ist (bzw. bei der PAC durch die Emission des ersten γ -Quants) und der Richtung $\vec{k}_2$, die durch die Emission des (zweiten) γ -Quants definiert wird, lautet^{*)}:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ N_1, N_2}} A_{k_1}(1) A_{k_2}(2) G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t) [(2k_1+1)(2k_2+1)]^{-1/2} \times Y_{k_1}^{N_1}(\theta_1, \varphi_1) Y_{k_2}^{N_2}(\theta_2, \varphi_2) \quad (3.2)$$

(Wegen der Definition der Winkel vergleiche man Abb. 3.1)

Durch diese Faktorisierung können der zeitabhängige, der geometrische und der die Anfangsanisotropie beschreibende Anteil zur Winkelverteilung getrennt behandelt werden.

Der Anisotropiekoeffizient $A_{k_1}(1)$, der die unterschiedliche Besetzung der Subzustände beschreibt ($\sim P(m)$), ist nur in den seltensten Fällen für die Kernreaktion bekannt. Hingegen ist der Koeffizient $A_{k_2}(2)$ durch den Multipolübergang festgelegt und kann, wenn die Multipolordnung bekannt ist, berechnet werden (man vergleiche Ref. 37).

Gleiches gilt für die Kugelfunktionen $Y_{k_1}^{N_1}(\theta, \varphi)$, die bei gegebener Nachweisgeometrie und bekannter Spinsequenz ebenfalls festliegen.

Der Störfaktor $G_{k_1 k_2}^{N_1 N_2}(t)$ gibt die zeitliche Entwicklung der Dichtematrix, die

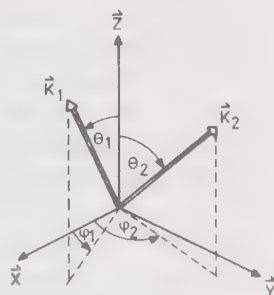


Abb. 3.1:

Definition der Winkel θ und φ
(nach Ref. 36)

^{*)} Die Summationsindizes k_i und die Vektoren $\vec{k}_i$ sind unabhängig voneinander.

die Besetzung der m-Zustände des isomeren Niveaus mit der Lebensdauer τ_N beschreibt, wieder:

$$f_{k_1, k_2}^{N, N_1} = \sum_{m_a, m_b} \text{Störfaktor}(\bar{I}, m_a, m_b, k_1, k_2, N_1, N_2) \langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle \langle m_b' | \Lambda(t) | m_a' \rangle^* \quad (3.3)$$

Wird ein axialsymmetrisches Störfeld vorausgesetzt, dessen Symmetrieachse man parallel zur z-Achse wählt, die gleichzeitig Quantisierungsachse für die Eigenfunktionen $|m\rangle$ des Hamiltonoperators ist, dann sind H_{el} und $\Lambda(t)$ diagonal in dieser Darstellung, und es gilt:

$$\langle m_b | \Lambda(t) | m_a \rangle = \exp[-(i/\hbar) E_m t] \delta_{m_a, m_b} \delta_{m_a, m_b}$$

Der Störfaktor erhält dann die Form:

$$f_{k_1, k_2}^{N, N_1}(t) = \sum_{m_1} \text{Störfaktor}(\bar{I}, m_1, m_1, k_1, k_2, N_1) \exp[-(i/\hbar)(E_{m_1} - E_{m_1}) t] \quad (3.4)$$

Die Eigenwerte für den Hamiltonoperator (2.8) eines axialsymmetrischen Feldgradienten sind in Gleichung (2.10) bzw. (2.11) angegeben. Damit ergibt sich für den Störfaktor:

$$G_{k_1, k_2}^{NN}(t) = \sum_n S_{nN}^{k_1, k_2} \cos(n \omega_0 t) \quad (k_1, k_2 \text{ gerade}) \quad (3.5)$$

Setzt man zudem eine polykristalline Probe voraus, so muß der Hamiltonoperator der Wechselwirkung für jeden Mikrokristall diagonalisiert und anschließend über alle Raumrichtungen der Mikrokristalle integriert werden. Der Störfaktor wird dadurch unabhängig von der Richtungsquantenzahl N und es treten nur Terme mit $k_1 = k_2$ auf:

$$G_{k, k}(t) = \sum_n S_{kn} \cos(n \omega_0 t) \quad (3.6)$$

Die Amplituden sind gegeben durch die Spinfaktoren:

$$s_{kn} = \sum_{m, m'} \begin{pmatrix} I & I & k \\ m & -m & m+m' \end{pmatrix}^2 \quad (3.7)$$

Die Multiplizität $n_{\max}$ der Grundfrequenz ω_0 ist $n_{\max} = |m^2 - m'^2|$ für ganzzahlige und $2n_{\max} = |m^2 - m'^2|$ für halbzahlige Spins. Da in diesem speziellen Fall $G_{kk}(t)$ unabhängig von N ist, kann das Additionstheorem für die Kugelfunktionen angewendet werden, und die Winkelverteilung (3.2) erhält die Form:

$$W(\theta, t) = \sum_k A_{k_1}(t) A_{k_2}(t) G_{kk}(t) P_k(\cos \theta) \quad (3.8)$$

In den vorliegenden Experimenten werden nur Terme mit $k = 2$ beobachtet. (Die von Bertschat und Mitarbeitern³⁸⁾ für ^{67}Zn sowie von Sielemann³¹⁾ für ^{67}Ge beobachteten Werte von $A_4 \approx 0,05$ bzw. $A_4 \approx 0,06$ können wegen der nicht ausreichenden Statistik der Modulationsspektren nicht beobachtet werden.)

Eine schematische Wiedergabe der Methode findet man in Abb. 3.2, wobei die Lebensdauer des isomeren Niveaus unberücksichtigt gelassen und die Anisotropie zu $A_2 = A_2(1) \cdot A_2(2) = 0,5$ und $I = 9/2$ ($k \leq 2$) angenommen wurde, ein axialsymmetrischer EFG wird vorausgesetzt. Die Abb. 3.2a stellt die Hyperfeinaufspaltung durch die Quadrupolwechselwirkung mit der z-Achse des EFG als Quantisierungsachse dar. Die Übergangsenergien $\hbar \omega_0^n$ sind eingezeichnet, die Stärke der Pfeile repräsentiert die Amplituden s_{kn} für die entsprechenden Übergänge,

Der gepulste Teilchenstrahl trifft das polykristalline Target; durch die Kernreaktion wird eine nicht isotrope Besetzung der Subzustände des isomeren Niveaus, charakterisiert durch die Dichtematrix ρ_a , erzeugt. Durch die elektrische Wechselwirkung werden Übergänge ω_0^n induziert, und dadurch wird eine Umbesetzung der Subzustände erreicht, die durch den Entwicklungsoperator $\Lambda(t)$ beschrieben wird. Man erhält an-

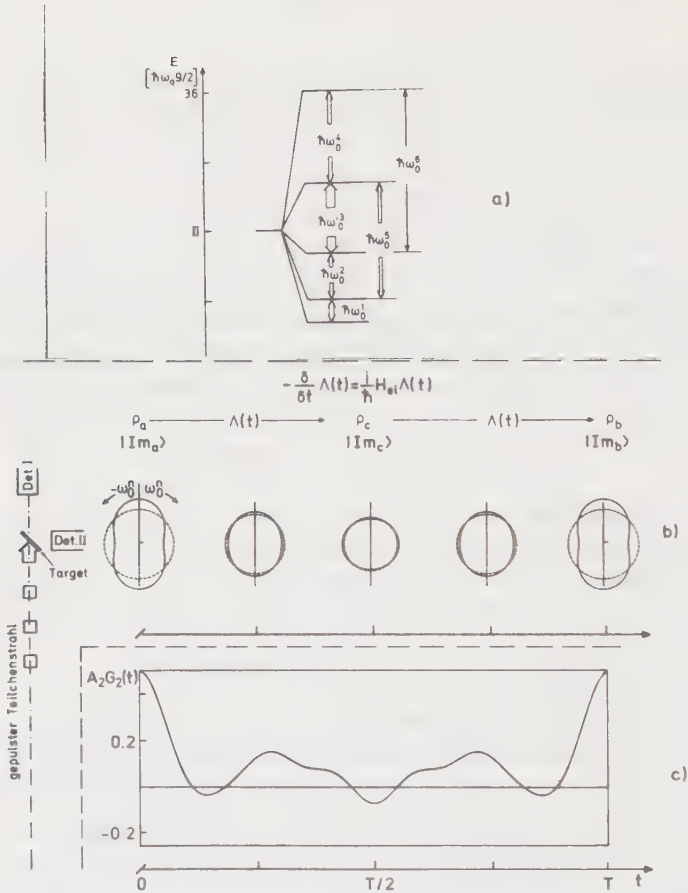


Abb. 3.2:

Schematische Darstellung der DPAD-Methode. Es werden der Spin $I = 9/2$ und die Anisotropie $A_2 = 0,5$ sowie eine polykristalline Probe angenommen. Die Lebensdauer des isomeren Niveaus bleibt unberücksichtigt.

- Hyperfeinaufspaltung durch die Quadrupolwechselwirkung.
Die Übergangsfrequenzen $h\omega_0^n$ und ihre Stärke sind eingezeichnet.
- Räumliche Verteilung der γ -Strahlung für verschiedene Zeiten nach der Anregung durch den Teilchenstrahl
- Beobachtete Intensitätsmodulation $4/3 R(t) = A_2 G_2(t)$ (vergleiche Text)

dere zeitabhängige Besetzungswahrscheinlichkeiten der m-Zustände, die bei den Zeiten $t=T/2; T$ durch die Dichtematrizen ρ_c bzw. ρ_b charakterisiert sind. Die Emissionswahrscheinlichkeit eines γ -Quants, wenn das Spinnsystem nach einer Zeit t den Zustand, bestimmt durch die Dichtematrix ρ_c , einnimmt, wird durch die Winkelverteilung Gleichung (3.8) beschrieben. Diese Winkelverteilung ist in Abb. 3.2b für einige Zeiten t wiedergegeben, wobei zum Vergleich eine isotrope Verteilung als gestrichelte Kurve eingetragen ist. Die unter den Winkeln $\theta=0^\circ$ und $\theta=90^\circ$ zur Strahlachse aufgestellten Detektoren I und II registrieren die γ -Intensität als Funktion der Zeit. Die in den Detektoren beobachtete Intensitätsmodulation wird gemäß Gleichung (3.16) ausgewertet; die dabei erhaltene Funktion $A_2 \cdot G_2(t) \approx 4/3 \cdot R(t)$ ist in Abb. 3.2c dargestellt.

3.2. Meß- und Auswertgleichungen

Beim Experiment wird die Intensitätsverteilung der γ -Strahlung unter festem Winkel $\theta(k_2)$ zur Strahlachse k_1 vom Detektor gemessen. Die Intensitätsverteilung setzt sich aus drei Anteilen zusammen:

- 1) Einer der Lebensdauer des isomeren Kernniveaus entsprechend abklingenden Intensität $I = I_0 \cdot e^{-t/\tau_N}$,
- 2) der anisotropen Winkelverteilung, beschrieben in Gleichung (3.8) und
- 3) einem Untergrund U_0 , der hier als zeitlich konstant angesetzt werden soll.

$$I(\theta, t) = U_0 + W(\theta, t) \cdot I_0 \cdot e^{-t/\tau_N}$$

mit (3.8) und $k \leq 2$ gilt dann:

$$I(\theta, t) = U_0 + I_0 e^{-\frac{t}{T_n}} (1 + A_2 G_2(t) P_2(\cos \theta)) \quad (3.9)$$

wobei $A_2 \equiv A_2(1) \cdot A_2(2)$, $G_{22}(t) \equiv G_2(t)$ gesetzt wurde.

Treten zusätzliche Störungen auf, so ist Gl.(3.9) durch einen Dämpfungsfaktor $T_n(t)$ zu ergänzen. Solche Störungen können durch Strahlungsschäden des Gitters oder durch unterschiedliche Gitterplätze des Sondenatoms hervorgerufen werden. In vielen Fällen genügt es, diese Störungen durch eine Verteilungsfunktion $P(\omega)$ um den Mittelwert ω_0 mit der Halbwertsbreite $\delta = \Delta\omega/\omega_0$ zu approximieren.³⁹⁾ Für die zwei üblichen Verteilungsfunktionen, die Gauß- und die Lorentzverteilung gilt:

Gaußverteilung:

$$P(\omega) d\omega = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \delta_G \omega_0} \exp \left[-\frac{1}{2} (\omega_0 - \omega)^2 / (\delta_G \omega_0)^2 \right] d\omega \quad (3.10)$$

Lorentzverteilung:

$$P(\omega) d\omega = (\delta_L \omega_0 / \{ \pi [(\delta_L \omega_0)^2 + (\omega_0 - \omega)^2] \}) d\omega \quad (3.11)$$

Für die Dämpfungsfaktoren $T_n(t)$ erhält man damit:

$$T_n(t) = \exp \left[-\frac{1}{2} (\delta_G^2 \omega_0 t)^2 \right] \quad (3.12)$$

bzw.

$$T_n(t) = \exp \left[-\delta_L^2 \omega_0 t \right] \quad (3.13)$$

Wird eine zeitlich fluktuierende Störwechselwirkung nach Abragam und Pound⁴⁰⁾ angenommen, dann erhält man für den Dämpfungsfaktor $T_k(t)$:

$$T_k(t) = \exp \left[-\lambda_k \cdot t \right] \quad (3.14)$$

$$\lambda_k = \frac{q}{40} \frac{(eQ)^2}{\hbar^2} e^{\langle q^2 \rangle} \frac{4I(I+1-7)}{I^2(2I-1)^2} \tau_c \quad (k=2) \quad (3.14a)$$

Voraussetzungen für diesen Ansatz sind: Für die Korrelationszeit τ_c muß gelten $\tau_c \ll \tau_N$ (3.14b) und für das Produkt aus mittlerer Wechselwirkungsfrequenz und Korrelationszeit $\tau_c \langle \omega_K^2 \rangle^{1/2} \ll 1$ (3.14c). τ_c und $\langle \omega_K^2 \rangle^{1/2}$ müssen dabei zeitunabhängig sein.

Es soll hier betont werden, daß für die statische Verteilung für $t \rightarrow \infty$ stets ein "hard-core"-Wert beobachtet wird, da für den Wert mit $n = 0$ keine Modulationsfrequenz verbunden ist und folglich auch keine Abschwächung aufgrund einer Frequenzverbreiterung erfolgen kann. Für die zeitabhängige Störung gilt jedoch $T_K(t) \rightarrow 0$ für $t \rightarrow \infty$.

Die Meßgleichung lautet damit insgesamt:

$$I(\theta, t) = U_0 + \bar{I}_0 e^{-t/\tau_c} \left[1 + A_2 \sum_n s_{2n}(\omega_n, t) \cdot T_n(t) \cdot P_2(\omega\theta) \right] \quad (3.15)$$

Bei den Messungen werden gleichzeitig Intensitätsspektren für $\theta = 0^\circ$ und $\theta = 90^\circ$ aufgenommen; von den Spektren wird der konstante Untergrund U_0 subtrahiert $I' = I - U_0$, und der Ausdruck $R(t)$ gebildet:

$$R(t) = \frac{I'(0^\circ, t) - \alpha I'(90^\circ, t)}{I'(0^\circ, t) + \alpha I'(90^\circ, t)} \approx b_2 \sum_n s_{2n}(\omega_n, t) \cdot T_n(t) \quad (3.16)$$

α ist eine Normierungskonstante. $\alpha = \frac{\sum_i K_i (I'_i(0^\circ, t))}{\sum_i K_i (I'_i(90^\circ, t))}$
 K_1 = Kanalinhalte

Für den Anisotropiekoeffizienten b_2 erhält man:

$$b_2 = \frac{3/4 A_2}{1 + 1/4 A_2} \approx \frac{3}{4} A_2 \quad (A_2 \ll 1) \quad (3.17)$$

An die aufbereiteten Meßdaten wurde die Funktion $R(t)$ angepaßt, wobei ω_0 , b_2 und gegebenenfalls auch δ_0 , δ_L freie Parameter sind. Außerdem wurde noch eine Verschiebung der Grundlinie und eine Steigung derselben als freie Parameter zugelassen, wodurch die bei den hohen γ -Intensitäten der "in-beam"-Messung

auftretenden Totzeiteffekte der Elektronik kompensiert werden können. Die Korrelation von b_2 mit diesen Parametern bei der Anpassung nach dem χ^2 -Test ist jedoch verhältnismäßig groß ($>0,5$) und kann insbesondere bei schlechter Statistik zu falschen Werten der Anisotropie führen. Zu Testzwecken wurde auch der Zeitnullpunkt frei gelassen.

3.3. Kernphysikalische Eigenschaften der Sonden

Die Quadrupolwechselwirkung in den verschiedenen Matrizen wurde an den bekannten $9/2^+$ -Niveaus der Kerne ^{67}Ge und ^{67}Zn gemessen. Sie werden über (α, n) -Reaktion vom ^{64}Zn bzw. ^{64}Ni bevölkert. Die Q-Werte der Reaktionen liegen bei -9,187 MeV bzw. -4,89 MeV; der Coulombwall beider Kerne ist bei ca. 9 MeV. Damit sollten bei der zur Verfügung stehenden Energie der α -Teilchen von ca. 12 MeV die für die Messungen erforderlichen Wirkungsquerschnitte erzielt werden können. Der Abb. 3.3 entnimmt man, daß sich der Wirkungsquerschnitt für die Bevölke-

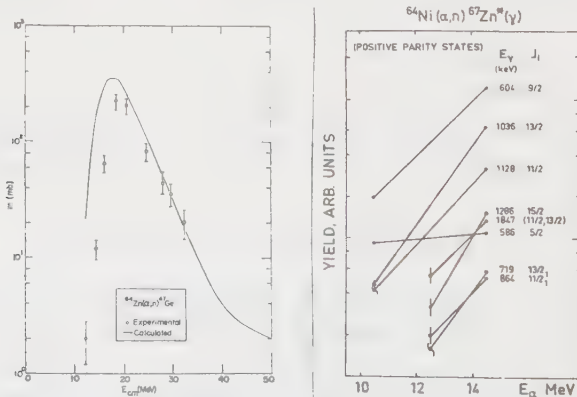


Abb. 3.3:

a) Totaler Wirkungsquerschnitt für die Reaktion $^{64}\text{Zn}(\alpha, n)^{67}\text{Ge}$ als Funktion der Energie der α -Teilchen (aus Ref. 41)

b) Anregungsfunktion der tiefliegenden Zustände positiver Parität in ^{67}Zn (aus Ref. 42).

rung des $9/2^+$ -Zustandes bei der Reaktion $^{64}\text{Ni}(\alpha, n)^{67}\text{Zn}$ im Bereich der hier interessierenden Energien von 12,5 MeV (maximale Energie des Beschleunigers) und 10 MeV (Dicke des Targets ≈ 2 MeV) nur um den Faktor 2-3 ändert, und damit günstige Voraussetzungen für die Implantationsexperimente bietet (s. Abschnitt 5). Weniger günstig sind die Verhältnisse diesbezüglich bei der Reaktion $^{64}\text{Zn}(\alpha, n)^{67}\text{Ge}$, hier ändert sich der totale Wirkungsquerschnitt um ca. eine Größenordnung.

Ausschnitte der Termschemata für die beiden Kerne $^{67}\text{Ge}^{31)}$ und $^{67}\text{Zn}^{42)}$ sind in Abb. 3.4a bzw. 3.4b dargestellt. Die isomeren

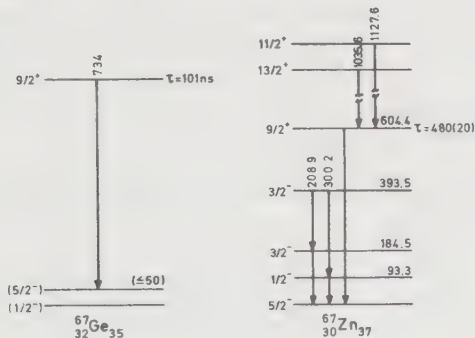


Abb. 3.4:

Niederenergetischer Teil der Niveauschemata von ^{67}Ge und ^{67}Zn (Auszug). (nach Ref. 31 bzw. 42, die Lebensdauer des isomeren Niveaus von ^{67}Zn entstammt der Ref. 38).

$9/2$ -Niveaus beider Kerne zerfallen über M2-Strahlung in den $5/2$ -Zustand. Die Energien der γ -Quanten werden von den Autoren mit 734 keV bzw. 604,4 keV angegeben. Sie liegen damit oberhalb der Annihilationsenergie von 511 keV und sind daher gut für die Experimente geeignet. Die Lebensdauer des isome-

Die experimentellen Gegebenheiten der Methode der gestörten Winkelverteilung gestatten es, einen Zeitbereich von etwa dem Fünffachen der Lebensdauer zu beobachten.

Quadrupolmoment und Lebensdauer begrenzen wesentlich die Empfindlichkeit des Sondenkerns für die Messung der elektrischen Hyperfeinwechselwirkung; zusätzlicher Parameter ist dabei der Spin des isomeren Niveaus. Die Genauigkeit der Bestimmung der Quadrupolkopplungskonstanten hängt u.a. von der Anzahl der beobachteten Perioden ab. Setzt man voraus, daß für eine sinnvolle Auswertung mit Frequenzfehlern von <5% etwa eine halbe Periode T_0 beobachtet werden sollte⁴⁵⁾, so erhält man für die maximal beobachtbare Periode ca. $10 \cdot \tau_N$.

Mit Hilfe dieser Bedingung berechnet man aus Gleichung (2.13) für den kleinsten beobachtbaren EFG

$$eq_{\min} = \frac{4I(2I-1) \cdot h}{n \cdot e \cdot Q \cdot 10 \tau_N} \quad n = \begin{cases} 3 & I \text{ ganzzahlig} \\ 6 & I \text{ halbzahlig} \end{cases} \quad (3.18)$$

In Abb. 3.5 sind die minimal beobachtbaren EFG $eq_{\min}$ als Funktion des Produkts aus Quadrupolmoment und Lebensdauer des isomeren Niveaus für einige Spins eingetragen. Für alle EFG oberhalb der Geraden ist die Bedingung $T_0 < 10 \cdot \tau_N$ erfüllt, der Abstand zu der jeweiligen Geraden ist ein Maß für die Genauigkeit der Daten. Die in dieser Arbeit verwendeten Kernsonden und die aus den Kopplungskonstanten berechneten EFG, sowie die in diesem Zusammenhang interessierenden Literaturwerte sind in das Diagramm aufgenommen. Die Quadrupolmomente und Lebensdauern entstammen der Tabelle III.1, die Referenzen für die aus den gemessenen Kopplungskonstanten berechneten EFG entnimmt man der Tabelle VII.2. Das Diagramm gibt einen Überblick über die Genauigkeit der in Abschnitt 7 diskutierten Daten (statistische Fehler u.a. Fehlerquellen sind nicht berücksichtigt).

Für das im späteren Zusammenhang erwähnte ¹⁹⁷Hg gibt es bisher keine Angaben für das Quadrupolmoment, diese Werte konnten deshalb nicht mit in das Diagramm aufgenommen werden; aus den gemessenen Wechselwirkungskonstanten⁵¹⁾ läßt sich entnehmen, daß das Quadrupolmoment klein sein sollte, vermutlich kleiner als 0,15b.

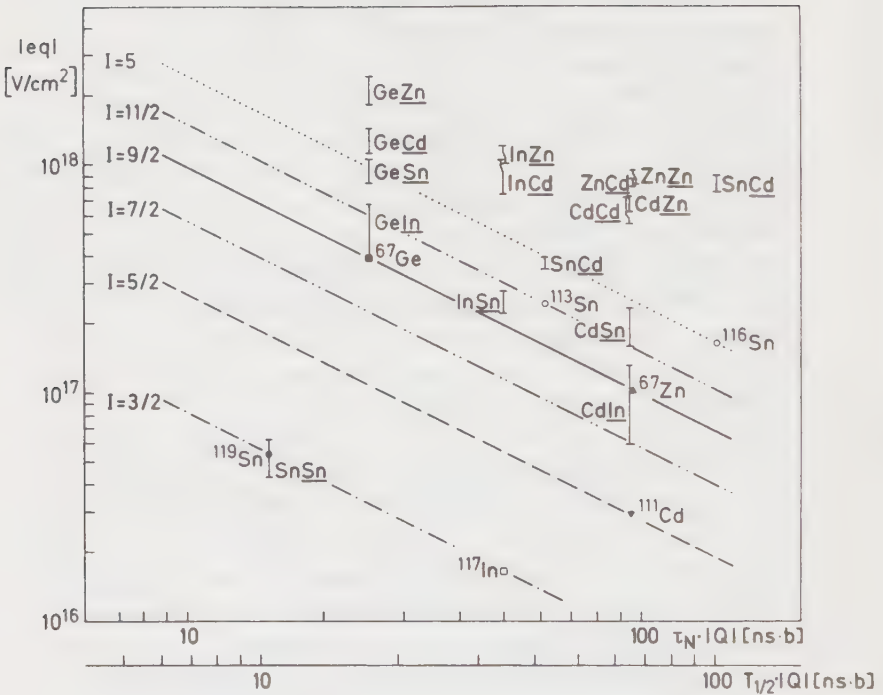


Abb. 3.5:

Die mit der Methode der gestörten Winkelverteilung minimal beobachtbaren EFG als Funktion des Produkts aus Quadrupolmoment Q und Lebensdauer τ_N des isomeren Zustandes. Die Gerade entspricht für den jeweiligen Spin I der Bedingung $T_O = 10\tau_N$ (T_O = Periode der Wechselwirkungsfrequenz). Für alle Werte oberhalb der jeweiligen Geraden wird mehr als die halbe Periode beobachtet. Die mit den Sonden ^{67}Ge , ^{67}Zn , ^{111}Cd , ^{117}In und $^{113}, ^{116}, ^{119}\text{Sn}$ bestimmten EFG in den verschiedenen Matrizen sind eingetragen (Q und τ_N sind der Tabelle III.1 entnommen).

4. Experimentelle Durchführung

4.1. Versuchsaufbau und -durchführung

Für die Messungen standen der elektrostatische 7 MV Van-de-Graaff-Beschleuniger des Hahn-Meitner-Instituts und für einige Messungen von $^{67}\text{GeSn}$ auch der Tandembeschleuniger des Tandemlabors der Universität Erlangen zur Verfügung⁺.

In der Tabelle IV.1 sind die verwendeten Reaktionen, die eingestellten Strahlparameter, die Targets und die Targettemperaturen eingetragen. Die Lebensdauer des 9/2-Zustandes von ^{67}Ge gestattete es, die interne 1 MHz-Pulsung des Beschleunigers zu verwenden, für die Messungen am ^{67}Zn mußte mit Hilfe eines elektrostatischen Deflektors der Pulsabstand auf 2 μs verlängert werden. Für die Messungen von $^{67}\text{GeSn}$ bei Temperaturen von 294 K und 161 K wurde aus Meßzeitgründen ein Pulsabstand von 0,5 μs gewählt. Die in der Tabelle angegebenen Stromwerte sind Richtwerte, die vor bzw. nach der Messung festgestellt wurden, da keine kontinuierliche Überwachung des Stromes während der Messung möglich war. Die Konstanz des Stromes wurde anhand der Intensität der verzögerten Linien überprüft, die für die Mehrschichtentargets typischerweise bei ca. 2 kHz, für die Zn-Dicktargets bei etwa dem doppelten Wert, je nach eingestelltem Strom und Abstand der Detektoren vom Target, lagen. Wurde keine neue Messung der Strahlparameter durchgeführt und keine weiteren Veränderungen an der Beschleunigereinstellung vorgenommen, so wurden die Werte von dem vorherigen Temperaturpunkt eingetragen (eingeklammerte Werte). Für die einzelnen Targets sind die Messungen in ihrer zeitlichen Reihenfolge aufgeführt.

⁺ Ich danke den Herren P.Heubes, R.Keitel, W.Loeffler, W. Witthuhn für die hilfreiche Zusammenarbeit bei den Experimenten.

Tab. IV. 1:
Zusammenstellung
der experimentellen
Meßbedingungen

Reaktion	Target	Target- nummer	Teilchen- energie	Strom [nA]	Pulsung Δt [ns]	Target- temperatur	Bemerkungen
$^{64}\text{Zn}(\alpha, n)^{67}\text{Ge}$ $Q = -9,187 \text{ MeV}$	natZn	I	12,2 (12,2) (12,2)	70 - 80 (70 - 80) (70 - 80)	10 13 13	115 190 347	1. MeBreihe
		II	(12,2) (12,2)	(70 - 80) (70 - 80)	15 20	522 603	
		III	(12,2)	(70 - 80)	20	163	
		IV	12,28 12,28 12,28 12,28	130 130 130 130	6 10 10 10	204 200 283 391	2. MeBreihe
		V	12,28 12,28	130 130	11 11	505 575	
		1	12,0 (150)	150 (150)	10 10	293 383	
		2	12,0 (150)	(150)	9	253	
		1	12,0 (150)	(150)	9	443	
		1	11,99 120 - 150	120 - 150	14	169	
		1	11,99 110 - 130	110 - 130	14+20	343	
		1	11,99 (110 - 130)	(110 - 130)	20	211	
		1	11,99 110 - 130	110 - 130	20	413	
		1	11,99 (110 - 130)	(110 - 130)	20	173	
$^{64}\text{ZnS-In}$	natZnS-In	4	12,28	90	10	316	Terdem- beschleuniger Erlangen
		4	12,63	90	10	353	
		4	12,63	90 - 60	9	273	
		5	12,28	90	20	328	
		5	12,61	80	10+13	341	
		5	12,0	100 - 120	20	220	
		3	12,74 (120)	120 (120)	15	448	
		3	12,74 (120)	(120)	11	372	
		3	12,74 (120)	(120)	11+14	255	
		3	12,74 (120)	(120)	14	180	
$^{64}\text{Ni}(\alpha, n)^{67}\text{Zn}$ $Q = -4,89 \text{ MeV}$	natZnS-Sn	3	12,74 (120)	120 (120)	14	144	Terdem- beschleuniger Erlangen
		3	15,0 (120)	11 (120)	(16)	413	
		3	15,0 (120)	12 (120)	(16)	213	
		3	15,0 (120)	22 - 12	(16)	174	
		3	15,0 (120)	9	(16)	294	
		3	15,0 (120)	18	(16)	161	
		6	12,6 (120)	40 - 50 (120)	15	310	
		6	12,6 (120)	40 - 50	15	373	
		6	12,4 (120)	65	20	342	
		6	12,4 (120)	65	20	252	

Als Detektoren kamen auf Photomultiplier vom Typ DVP 56 aufgeklebte NaJ(Tl)-Kristalle der Größe 1,5"x1,5" Ø bzw. in einigen Fällen 2"x1,5" Ø zur Anwendung, die unter Winkeln von $\theta = 0^\circ$ und $\theta = 90^\circ$ bezüglich der Strahlachse aufgebaut waren. Gegen niederenergetische γ -Strahlung und Röntgenstrahlung wurden die Detektoren durch 1 mm Blei- und 2 mm Kupferblech abgeschirmt. Die nachfolgende Elektronik war eine standardmäßige "fast-slow" Koinzidenz, wie sie z.B. bei Bleck und Mitarbeitern⁵²⁾ ausführlich beschrieben ist; einige Erweiterungen und Verbesserungen dieser Anordnung beschreibt Zeitz⁴⁴⁾.

4.2. Targetanordnung

Als Targetkammer diente eine würfelförmige Aluminiumkammer mit Plexiglasfenstern⁺, die an das Strahlrohr angeflanscht werden konnte und mit dem Beschleunigervakuum direkt verbunden war. Durch eine Kühl-Heizkombination konnte die Temperatur von ca. 110 K bis ca. 700 K ohne Bruch des Vakuums variiert werden. Die Targets waren auf Kupferrahmen befestigt, die ihrerseits wiederum an die Kühl-Heiz-Kombination geschraubt werden konnten. Damit war ein problemloser Wechsel des Targets gegeben.

Die Temperaturmessung erfolgte i.a. mit drei Thermoelementen, von denen eines stets am Rahmen befestigt war, die anderen beiden wurden im Falle der Schichttargets mit Federn gegen die Rückseite der Goldbackings gedrückt und/oder zwischen Goldbacking und Befestigungsrahmen geklemmt, im Falle

⁺Konstruiert von E.Baltrusch (Abteilung Technik des HMI) in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe Kernmomente und innere Felder

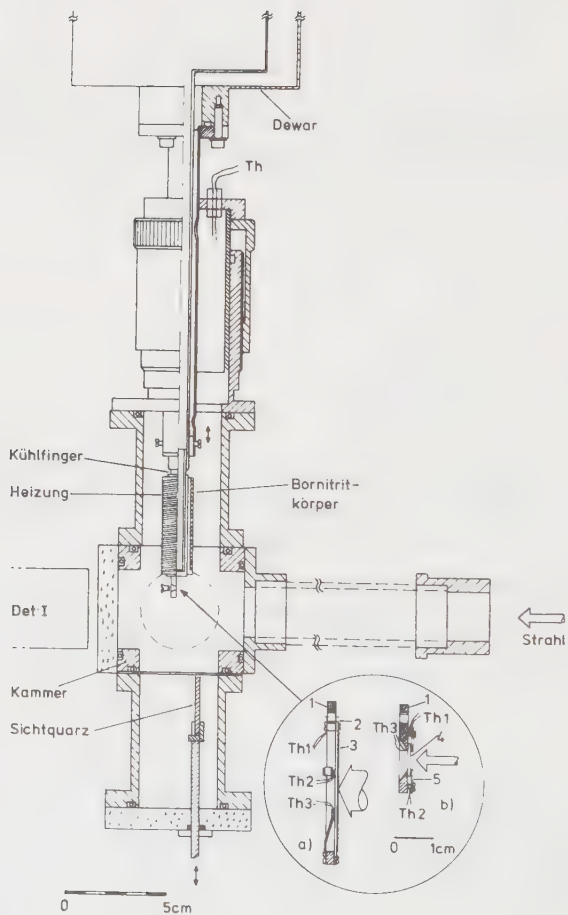


Abb. 4.1:

Querschnitt durch die Targetanordnung

a) für die Mehrschichtentargets ZnS-Cd, ZnS-In, ZnS-Sn und Ni-acc.-Cd

b) für das Dicktarget Zn

1 Targetrahmen aus Kupfer, 2 Goldbacking, 3 Mehrschichtentarget, 4 Zinktarget, 5 Goldmaske

der Dicktargets wurden die Thermoelemente zwischen Targethalter und Zinktarget sowie Goldmaske und Zinktarget geklemmt und fest in das Zink eingedrückt. Referenzpunkt war der Eispunkt des Wassers.

Details der Targetanordnung können aus der Abb. 4.1 entnommen werden. Die Stellung des Targets wurde stets so gewählt, daß die Flächennormale mit dem Strahl einen Winkel von 45° bildete, die Detektoren waren auf der dem Strahl abgewandten Seite des Targets aufgebaut (vergl. Abb. 3.2).

4.3. Die Temperaturmessung und ihre Fehler

Bei der Methode der gestörten Winkelverteilung ist die Temperaturmessung problematisch, weil nicht - wie z.B. bei Winkelkorrelationsmessungen - die Möglichkeit besteht, im Temperaturgleichgewicht zu messen; dies gilt sowohl im mikroskopischen als auch im makroskopischen Bereich.

Grundsätzlich sind zwei Fehlerquellen zu unterscheiden:

- 1) durch die spezielle Targetanordnung für die Ionenstrahlexperimente können Sondenort, Ort der Temperaturmessung und Ort der Temperaturerzeugung nicht identisch sein,
- 2) die vom Teilchenstrahl zugeführte Energie führt zu lokalen und globalen Temperaturänderungen.

Eine weitere Fehlerquelle sind Strahlintensitätsschwankungen. Bleck⁵³⁾ stellt bei Verwendung einer geregelten Widerstandsheizung thermische Instabilitäten von ca. 7 K fest; er ordnet diese den Intensitätsschwankungen zu. Wie die Messungen von $^{67}\text{GeZn}$ zeigen, muß im vorliegenden Falle die Temperaturkonstanz besser als 7 K sein, da ansonsten für die Spektren bei 600 K eine

Frequenzverteilung beobachtet werden müßte. Die Verwendung einer Elektronenstrahlheizung⁵⁴⁾, die die Temperaturkonstanz um einen Faktor 10 verbessern würde, ist wegen der Mehrschichtentargets (siehe dazu Abschnitt 5) nicht möglich.

(zu 1) Durch die Verwendung der oben skizzierten Targetkonstruktion sind Temperaturgradienten über die Gesamtfläche des Targets zu erwarten, insbesondere bei den Mehrschichtentargets, deren Goldbacking eine Oberfläche von ca. 6 cm^2 haben und vom Rand her über einen Rahmen geheizt werden. Damit ein Absputtern der Oberfläche weitgehend vermieden wurde, mußte für diese Targets der Strahlfleck auf ca. 2 cm^2 defokussiert werden.

Um einen Überblick über die möglichen Temperaturfehler zu erhalten, wurden - wie oben erwähnt - die Targets stets mit drei Thermoelementen versehen, die an verschiedenen Stellen des Targets montiert waren. Die gemessenen Temperaturdifferenzen waren beim Mehrschichtentarget z.B. $^{67}\text{GeCd}$ für die beiden an verschiedenen Stellen vom Goldbacking montierten Thermoelemente $< 9 \text{ K}$, zwischen dem Thermoelement am Rahmen und denen am Goldbacking jedoch für Temperaturen $T > 273 \text{ K}$ kleiner 7 K und für $T < 273 \text{ K}$ kleiner 30 K . Ähnliche Verhältnisse wurden bei den Messungen für $^{67}\text{GeSn}$ und $^{67}\text{GeIn}$ festgestellt. Für die Zn-Dicktargets waren wegen des besseren Wärmekontaktes und der kleineren Targetausdehnung die Temperaturdifferenzen um den Faktor 2 kleiner. Damit kann man die Temperaturverteilung, die durch die spezielle Targetkonstruktion erzeugt wird, nach oben abschätzen, sie sollte $< 9 \text{ K}$ für die Mehrschichtentargets sein. Die Güte der Spektren (Statistik) läßt es nicht zu, aufgrund von Anpassungen einer Verteilung dieses Temperaturintervall einzuschränken.

(zu 2) Die durch den Teilchenstrahl hervorgerufene makroskopische Temperaturänderung fällt je nach Targettemperatur unterschiedlich aus, es wurden Temperaturerhöhungen von ≈ 10 K bei Temperaturen um 150 K und < 1 K bei Temperaturen um 400 K gemessen. Welchen Einfluß die Zeitstruktur des Teilchenstrahls auf die lokale Temperatur nimmt, läßt sich nicht abschätzen, jedoch sollten z.B. Änderungen der Leistungsdichte Auswirkungen auf die Spektren zeigen, die aber bisher nicht beobachtet wurden.

Hinweise, daß die Temperaturänderungen, die in der Umgebung des Sondenkerns auftreten, sogenannte "thermal spikes", in Zeiten $\leq 10^{-8}$ sec abgeklungen sind, können aus Mößbauermessungen am gepulsten Teilchenstrahl gewonnen werden⁵⁵⁾. Es bleibt aber eine Abweichung von $T < 30$ K zwischen der Temperatur am Sondenort und der makroskopisch gemessenen bestehen. Wegen der vergleichbaren Verhältnisse in den hier geschilderten Experimenten ist mit Temperaturverschiebungen dieser Größenordnung zu rechnen. Diese großzügige Abschätzung der Temperaturverschiebung kann wegen der relativ großen Fehler bei der Messung von $^{111}\text{CdCd}^{4)}$, bei der ein direkter Vergleich zwischen DPAD und PAC möglich wäre, nicht weiter eingeschränkt werden.

Bis auf den Fehler, der durch die Strahlintensitätsschwankungen hervorgerufen wird, äußern sich alle übrigen Fehler als systematische Temperaturverschiebungen. Diese sind mit der hier verwendeten Meßanordnung nicht erkennbar. Aufgrund der oben angeführten Argumentation sollte der absolute Fehler der Temperaturmessung, der durch die lokalen und globalen Temperaturverschiebungen hervorgerufen wird, < 30 K sein. Es kann keine Aussage gemacht werden, ob dieser systematische Fehler über den gesamten vermessenen Temperaturbereich konstant bleibt. Aus den genannten Gründen wird auf eine Fehlerangabe bei den Temperaturwerten verzichtet.

In Einzelfällen wurden bei den Thermoelementen größere Abweichungen als oben angegeben festgestellt. Die Abweichungen konnten bei Prüfungen der Targetanordnung auf mangelnden Wärmekontakt oder beim Zinktarget auf starkes Bedampfen durch das sublimierte Zn zurückgeführt werden; die Temperaturwerte dieser Thermoelemente blieben unberücksichtigt. In zwei Fällen bei der Messung von $^{67}\text{GeSn}$ können keine Ursachen für die gemessenen Temperaturdifferenzen angegeben werden. Die Punkte sind gesondert gekennzeichnet.

5. Die Targets und ihre Präparation

Bei den Experimenten kamen zwei verschiedene Targettypen zur Anwendung:

- a) Dicktargets im Falle des $^{67}\text{GeZn}$
- b) Mehrschichtentargets für ^{67}Ge in In, Cd, Sn und ^{67}Zn in Cd.

Die Herstellung der Mehrschichtentargets und die Problematik, die mit der Verwendung dieser Targets für die Messung der Hyperfeinaufspaltung verbunden ist, wurde ausführlich bei Wichert⁴⁵⁾ beschrieben. Trotzdem wird auf einige Aspekte in Abschnitt 5.3 eingegangen.

5.1. Der Einfluß der Probenart auf die Störfunktion

Die Ableitung der Störfunktion $G_{kk}(t)$ stellt spezielle Anforderungen an die Struktur des Targets. In Abschnitt 3.1 wurde die Funktion $G_{kk}(t)$ unter der Voraussetzung einer polykristallinen Probe hergeleitet. Es stellt sich somit die Frage, inwieweit durch geeignete Targetpräparation diese Voraussetzung erfüllt werden kann und inwieweit durch äußere Bedingungen wie z.B. bei der Messung der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung sich bei Temperaturen in der Nähe des Schmelzpunktes die Struktur durch Kristallwachstum ändert und welchen Einfluß solche Änderungen auf die Störfunktion haben können.

Unter den vielfältigen Erscheinungsformen, die die Struktur der Probe haben kann, werden drei grundsätzliche Fälle unterschieden:

- a) die einkristalline Probe
- b) die Probe mit Textur
- c) die polykristalline Probe.

Unter einer Probe mit Textur soll hier eine polykristalline Probe verstanden werden, deren Mikrokristalle alle die gleiche Richtung der $\vec{c}$ -Achse aufweisen oder deren $\vec{c}$ -Achse in ein kleines Raumwinkelement $\Delta\Omega$ zeigt, d.h. eine Vorzugsrichtung gegeben ist⁵⁶⁾.

Charakteristisch für alle Probenarten ist, daß die Grundfrequenz ω_0 bei einer gegebenen elektrischen Quadrupolwechselwirkung stets gleich ist, ausgenommen die Fälle, bei denen für eine spezielle Wahl der Geometrie (z-Achse des EFG parallel zur Strahlachse) der Störfaktor von Einkristallproben zeitunabhängig wird. Die Störfaktoren für die einzelnen Probenarten unterscheiden sich lediglich in den $S_{nN}^{k_1 k_2}$ -Koeffizienten, d.h. in ihrem relativen Gehalt an Oberwellen.

Bei den Messungen zur Temperaturabhängigkeit des EFG für ⁶⁷GeZn wurden teilweise deutliche Abweichungen des Modulationsspektrums von der polykristallinen Störfunktion beobachtet. Beispiele für diese Abweichungen sind die Spektren bei $T = 522$ K und $T = 603$ K, die in Abb. 6.1 wiedergegeben sind. Anpassungen für diese Spektren mit den s_{kn} -Koeffizienten als freie Parameter ermöglichen zwar eine Verbesserung des χ^2 -Tests, Aussagen über die Art der Probe kann man jedoch nicht erhalten.

Für verschiedene Einkristallorientierungen bei konstantem Winkel $\varphi = 0^\circ$ (φ = Winkel zwischen Strahl und Projektion der $\vec{c}$ -Achse des Kristalls in die x-y-Ebene, ϑ = Winkel zwischen x-y-Ebene und $\vec{c}$ -Achse) sind die zu erwartenden Störfunktionen im Vergleich zu der einer polykristallinen Probe (gestrichelte Kurve) in Abb. 5.1 eingetragen. Nur bei der speziellen Orientierung zwischen $\vartheta = 40^\circ$ und $\vartheta = 50^\circ$ ist das Verhalten der Störfunktion von polykristalliner und einkristalliner Probe ähnlich.

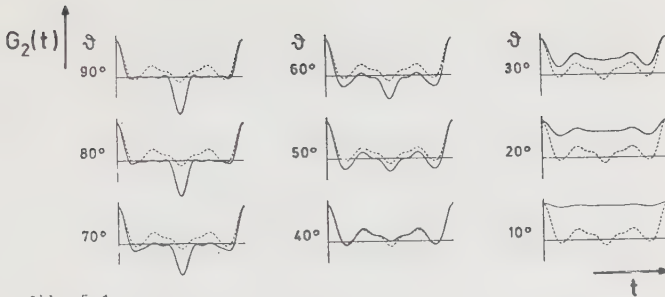


Abb. 5.1:

Störfunktion eines Einkristalls ($I = 9/2$) bei festem Winkel $\varphi = 0^\circ$ und verschiedenen Winkeln ϑ der $\vec{c}$ -Achse des Einkristalls zur Strahlachse. Zum Vergleich ist die Störfunktion einer polykristallinen Probe (gestrichelte Kurve) eingezeichnet.

Wichert⁴⁵⁾ konnte anhand von Beispielrechnungen zeigen, daß der Störfaktor für statistisch orientierte Einkristalle gegen den der polykristallinen Probe schnell konvergiert (Abb. 5.2). Schon für 6-10 Einkristalle ist eine Unterscheidung innerhalb der hier gegebenen Meßgenauigkeit kaum noch möglich.

Ein guter Test für die polykristalline Struktur des Targets sollte eine Röntgenanalyse (Debye-Scherrer) sein, da hierbei die Bedingungen wesentlich schärfer sind, d.h. die Mikrokristalle müssen eine Größe von ca. 10^{-3} bis 10^{-5} cm⁵⁷⁾ haben und müssen statistisch orientiert sein, um die richtigen Intensitätsverhältnisse zu beobachten. Die Größe der Mikrokristalle selbst läßt sich einfach durch mikroskopische Untersuchungen von Schliffen der Targets feststellen.

Ob die im Experiment beobachteten Abweichungen auf einen speziell orientierten Einkristall, auf Texturen oder auf nur wenige (< 6) Einkristalle statistischer Verteilung zurückzuführen sind, kann aus einer Anpassung der Amplitudenfaktoren nicht entnommen werden. Weitere Informationen aus

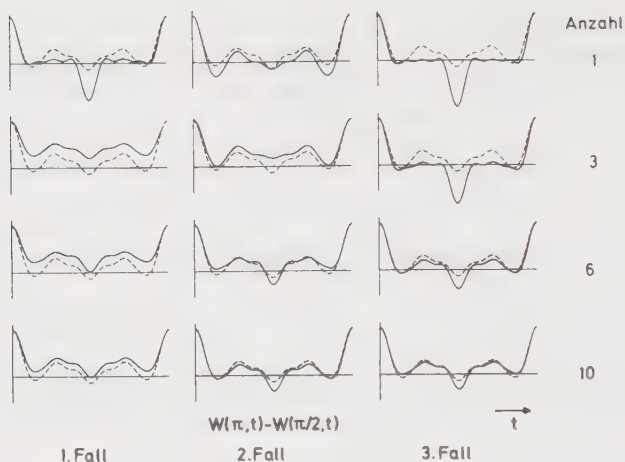


Abb. 5.2:

Überlagerung der Quadrupolwechselwirkung statistisch orientierter Einkristalle ($I = 9/2$) für drei verschiedene Anfangsbedingungen und verschiedene Anzahl der Einkristalle [aus Ref. 45]

anderen Untersuchungen sind notwendig. Zusätzliche Argumente liefern Röntgenbeugungsdiagramme und die mikroskopischen Untersuchungen, die im nächsten Abschnitt beschrieben werden.

5.2. Die Zink-Targets

Als Ausgangsmaterial dienten Zinkgußstangen mit einer Reinheit von 99,9985 %. Die Verunreinigungs-komponenten sind nicht bekannt. Für die zwei verschiedenen Meßreihen wurden insgesamt 5 Targets verwendet. Bei der ersten Meßreihe (Targets I-III) wurde das Zink im Anlieferungszustand verwendet, für die zweite Messung das Zink einer Kaltverformung unterworfen.

Die Mikroskopaufnahme eines Schliffes des Gußmaterials zeigt Abb. 5.3a. Die Kristalle verlaufen von der Mitte zum Rand sternförmig und haben eine Länge von 4-5 mm und eine Breite von 0,2-0,4 mm, die zum Rand hin zunimmt. Bei der Präparation der Targets IV und V der letzten Meßreihe wurde darauf geachtet, daß keine Texturen auftreten konnten. Vergleich einer Röntgenaufnahme der Targets IV,V mit der einer Pulverprobe ergab, daß die Targets polykristalline Struktur mit statistischer Orientierung besaßen.

Durch zusätzliche mikroskopische Untersuchungen wurde die Größe der Mikrokristalle zu $<50\text{ }\mu\text{m}$ festgestellt. Bei einer Größe des Strahlflecks von $\approx 2 \times 2\text{ mm}$ sollten in den Experimenten mehr als 1000 Mikrokristalle erfaßt werden. Eine unter gleichen Bedingungen hergestellte Zinkprobe wurde den Verhältnissen am Strahlrohr entsprechend 5 h bei ca. $T = 520\text{ K}$ getempert. Eine starke Rekristallisation konnte festgestellt werden. Die Größe der Kristalle lag bei ca. 2 mm, d.h. die Größe entsprach der des Strahlflecks. Aufnahmen der Schliffe dieser Probe vor und nach dem Tempern sind in den Abb. 5.3b bzw. 5.3c wiedergegeben,

Diese Untersuchungen zeigen, daß sich die Struktur der Probe als Funktion der Zeit ändert. Die Abweichungen der Spektren von der polykristallinen Störfunktion sollten damit auf eine mit der Zeit zunehmende Rekristallisation zurückzuführen sein. Im ungünstigsten Falle kann gegen Ende der Messungen nur noch ein Kristall erfaßt werden.

Um eine Fortpflanzung dieser Fehler zu verhindern, wurde nach den Hochtemperaturwerten das Target gewechselt. Eine Möglichkeit, diese Fehlerquelle vollständig zu beseitigen, besteht nur bei Messungen an Einkristallen. Dem stehen aber ein erhöhter Aufwand und größere Schwierigkeiten bei der Herstellung und der Ausrichtung der Targets gegenüber.

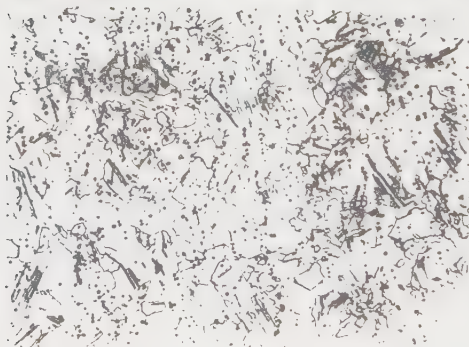
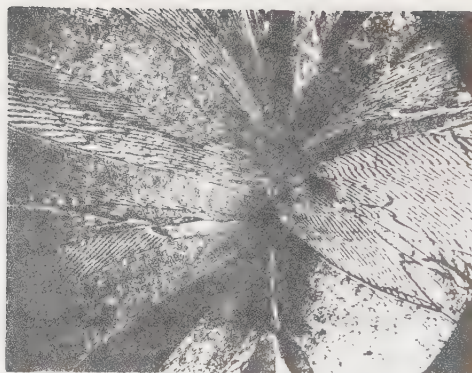


Abb. 5.3:

Mikroskopaufnahmen von Schliffen der Zn-Targets

- a) Gußmaterial (Vergrößerung ca. 50 : 1)
- b) mechanisch bearbeitete Probe (Vergrößerung ca. 200 : 1)
- c) gleiche Probe wie unter b, jedoch nach einer Ausheizzeit von $t = 5\text{ h}$ bei einer Temperatur von $T = 523\text{ K}$ (Vergrößerung ca. 50 : 1)

5.3. Die Mehrschichtentargets

Eine Übersicht über die bei den Messungen verwendeten Mehrschichtentargets und ihre Eigenschaften gibt die Tabelle V.1. Die Targets wurden durch wechselweises Aufdampfen von Reaktionsschicht und Wirtssubstanz auf 0,5 mm Goldblech bei einem Druck von ca. 10^{-6} Torr mit den in der Tabelle angeführten Schichtdicken in einem Arbeitsgang ohne Bruch des Vakuums hergestellt. Die Kontrolle der Schichtdicken erfolgte mit einem geeichten Schichtdickenmonitor. Zum Schutze gegen "sputtering", Einwirkungen der Atmosphäre und als zusätzlicher Wärmekontakt wurden die Targets mit einer ca. $150 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ dicken Goldschicht überzogen. Die Wirtsmatrixschichten zeigten polykristalline Struktur⁴⁵⁾.

Tab. V.1:

Zusammenstellung der Eigenschaften der verwendeten Targets ( = hexagonal,  tetragonal)

Wirtsmatrix			Reaktionsmatrix		Fehler der Schichtdicke	Schichtpaare	Target Nummer
Element	Kristallstruktur	Schichtdicke [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]	Verbindung	Schichtdicke [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]			
Cd		100	ZnS	30	15 %	16	1
		120	ZnS	80	15 %	9	2
		140	Ni-acc.	30	10 %	40	6
In		150	ZnS	40	15 %	40	5
		80	ZnS	50	15 %	40	4
Sn		80	ZnS	50	10 %	40	3
Zn		Dicktargts	-	-	-	-	I, II, III, IV, V

Während das Dampfen der Wirtssubstanzen Cd, In, Sn und Sb keine Schwierigkeiten bereitet, konnten als Reaktionssubstanzen nicht die reinen Elemente Zn bzw. Ni verwendet wer-

den. Zink sublimiert bei einer Temperatur von $T = 693 \text{ K}$ und ist deshalb zur Herstellung von Schichttargets durch Aufdampfen schlecht geeignet. Außerdem hat es selbst hexagonale Kristallstruktur. Nickel hat einen geringen Dampfdruck ($p < 10^{-10}$ Torr bei 1300 K) und schmilzt erst bei einer Temperatur von $T = 1726 \text{ K}$. Die bei diesen Temperaturen durch die Dampfzelle für das Nickel abgestrahlte Wärme würde die Schichttargets gefährden, da die Schmelztemperaturen für alle Wirtsmatrizen bei $T < 600 \text{ K}$ liegen. Zur Herstellung der Targets wurde aus diesem Grunde für die Reaktionsschichten ZnS bzw. Nickelacetylacetonat $\text{Ni}(\text{C}_5\text{H}_7\text{O}_2)_2$ ($T_M = 503 \text{ K}$, Sublimationspunkt $T_S = 458 \text{ K}$ bei $p = 0,25$ Torr) gewählt. Während ZnS sich beim Dampfen nicht zersetzt, ist dies für Nickelacetylacetonat nicht gesichert.

Um diese Probleme zu umgehen, wurde versucht, Ni-Cd-Schichttargets durch Elektrolyse aus wäßriger Lösung herzustellen. Mit diesen Targets wurde keine Wechselwirkung beobachtet. Möglicherweise ist dies auf die ferromagnetischen Eigenschaften der metallischen Reaktionsschicht zurückzuführen, oder aber die verwendeten Puffersubstanzen werden eingebaut und verursachen zusätzliche Störungen.

Die Dimensionierung der Mehrschichtentargets muß so gewählt werden, daß die bei der (α, n) -Reaktion in der Reaktionsmatrix erzeugten Endkerne mit hoher Wahrscheinlichkeit durch den übertragenen Linearimpuls in die Wirtsmatrix implantiert werden. Die Schichtdicken und die Gesamtdicke des Targets werden einmal durch die Reaktionskinematik und zum anderen durch das relative Bremsvermögen der Targetsubstanzen festgelegt. Die bei den α -Energien von $\approx 12 \text{ MeV}$ auftretenden Rückstoßenergien für den Endkern ^{67}Ge bzw. ^{67}Zn liegen ungefähr zwischen $0,3$ und $1,3 \text{ MeV}$, der Vorwärtswinkel beträgt maximal $\text{ca. } 20^\circ$.

Entsprechend der Theorie von Lindhard^{58,59)} erhält man für die oben angegebenen Rückstoßenergien Reichweiten von 70-200 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ für ^{67}Ge in ZnS und 50-140 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ für ^{67}Zn in Nickel-acetylacetonat, für die verschiedenen Wirtssubstanzen ergeben sich Werte von 110-290 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. Die Gesamtdicke des Targets wird so gewählt, daß der Verlust des Primärstrahls ca. 2 MeV beträgt, der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion $^{64}\text{Zn}(\alpha, n)^{67}\text{Ge}$ fällt dann um etwa eine Größenordnung ab. Die diesbezüglich günstigeren Verhältnisse bei der Reaktion $^{64}\text{Ni}(\alpha, n)^{67}\text{Zn}$ (vergl. Abb. 3.3) erlauben eine größere Dicke des Targets als 2 MeV, sie konnten aber wegen der Verwendung von isotopenreinem Nickel nicht voll ausgenutzt werden.

Die Reichweite des Primärstrahls ist ca. um den Faktor 6 größer als die integrale Dicke der Reaktions- und Wirtsgitterschichten. Der Primärstrahl wird im Goldbacking, das als Halter und Wärmeleiter für die Mehrschichtentargets diente, gestoppt. Störungen der Wirtsgitter durch eingelagertes Helium sollten damit nahezu ausgeschlossen sein,

6. Ergebnisse und Diskussion

6.1. Ergebnisse der Messungen

Die von den Detektoren unter $\Theta = 0^\circ$ und $\Theta = 90^\circ$ in Bezug auf die Strahlachse aufgenommenen Intensitätsspektren der γ -Strahlung wurden gemäß Gleichung (3.16) ausgewertet, wobei vorher für die einzelnen Detektoren ein konstanter Untergrund subtrahiert wurde. Systematische Fehler z.B. des Untergrundes U_0 sind nur schwer zu erkennen; auch die χ^2 -Anpassungen innerhalb der vorgegebenen Fehlergrenzen ist kein ausreichendes Kriterium, da Fehler des Untergrundes durch andere Parameter kompensiert werden können, insbesondere wenn nur ein Teil der Periode beobachtet wird, wie beim $^{67}\text{GeIn}$ (vergl. Ref. 45). Im folgenden wird - wenn nicht anders erwähnt - stets der Fehler der Anpassung angegeben.

6.1.1. Ergebnisse der Messungen für $^{67}\text{GeZn}$

In Abb. 6,1 sind Zeitspektren der Meßreihen 1 und 2 (vergl. Tab. IV.1) dargestellt. Die Tabelle VI.1 gibt die nach Gleichung (3.16) berechneten Parameter an.

Tab. VI.1:
Ergebnisse der
Anpassungen für
 $^{67}\text{GeZn}$

T [K]	ν_Q [MHz]	A_2^+ [%]	δ_G [%]
115	118,2(12)	9,4(14)	6,4(12)
163	113,3(10)	8,4(14)	4,5(13)
190	110,7(14)	6,1(14)	3,4(21)
200	111,9(19)	5,9(16)	
204	112,9(47)	4,8(15)	
283	106,8(31)	4,2(12)	
347	103,3(11)	3,4(9)	
391	101,2(15)	5,1(16)	
505	95,8(10)	20,7(36)	
522	93,1(4)	19,4(12)	
575	90,6(12)	17,0(43)	
603	88,4(4)	20,2(15)	

⁺) Werte auf Zeitauflösung gemäß Tabelle IV.1 korrigiert.

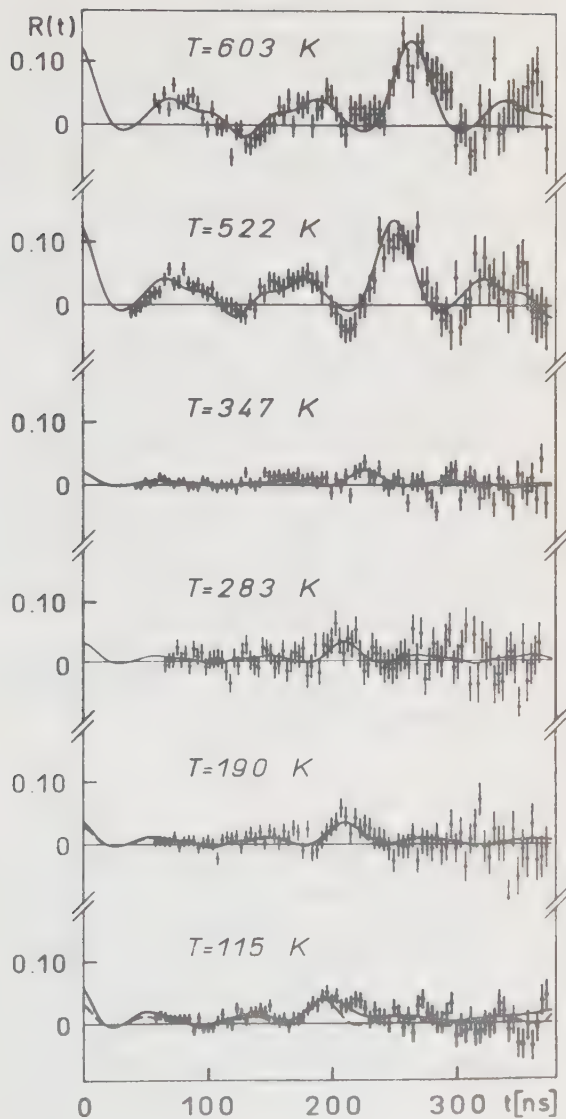


Abb. 6.1:

DPAD-Spektren für $^{67}\text{GeZn}$ bei verschiedenen Temperaturen. Die ausgezogenen Kurven für $T = 155\text{ K}$ und $T = 190\text{ K}$ stellen Anpassungen mit einer Gaußverteilung dar. Zum Vergleich ist eine Anpassung ohne Verteilung gestrichelt eingezeichnet.

chung (3.16) angepaßten Frequenzen und die Anisotropien, die gemäß der Pulsbreite Tab. IV.1 korrigiert wurden, wieder. Für die Spektren bei Temperaturen $T < 200$ K kann durch Berücksichtigung einer Gaußverteilung für die auftretenden Frequenzen (Gleichung 3.12) die Anpassung verbessert werden; zum Vergleich ist in Abb. 6.1 für diese Temperaturen die Anpassung ohne Frequenzverteilung (gestrichelte Kurve) eingetragen. Die Werte von ν_Q für $T < 200$ K in Tab. VI.1 sind den Anpassungen mit der Gaußverteilung entnommen.

Die Spektren bei $T = 522$ K und $T = 603$ K, die mit dem gleichen Target ohne Unterbrechungen aufgenommen wurden, zeigen deutlich einen Unterschied im Oberwellengehalt, der - wie in Abschnitt 5.1 diskutiert - auf die Änderung der Targetstruktur zurückzuführen sein sollte. Sowohl für die Anpassung mit als auch ohne Frequenzverteilung wird für die extrahierten Anfangsanisotropien im Bereich zwischen $T \approx 200$ K und $T \approx 400$ K ein Minimum der Anisotropie beobachtet (vergl. Abb. 8.1); im Bereich von 500 K bis 600 K erhält man innerhalb der Fehler eine konstante Amplitude.

Anpassungen mit nichtaxialsymmetrischen Feldgradienten erbrachten innerhalb der statistischen Genauigkeit keine Verbesserung des χ^2 -Tests.

6.1.2. Ergebnisse der Messungen für ^{67}Ge in Cd, In und Sn

Für diese Messungen wurden im Unterschied zu den Messungen von $^{67}\text{GeZn}$ die Schichttargets (vergl. Abschnitt 5.3) verwendet. Daraus sollte kein Unterschied für die gemessenen Frequenzen resultieren⁴⁵⁾, die gemessene Anisotropie jedoch kann durch experimentelle Parameter, wie z.B. Anstellwinkel des Targets oder Einschußenergie der Primärteilchen beeinflusst sein. Die

Abb. 6.2, 6.3, 6.5 stellen die Zeitspektren für die Systeme Cd, In und Sn dar; in den Tabellen VI.2-VI.4 sind die Parameter $A_2^{(1)}$ und $\nu_Q^{(1)}$ für die besten Anpassungen im Rahmen des χ^2 -Tests aufgeführt. Anpassungen mit einer 2. Frequenz $\nu_Q^{(2)}$ sind teilweise innerhalb der Schwankungsbreite von χ^2 geringfügig besser. In den Abb. 6.2, 6.3, 6.5 sind diese Anpassungen als gestrichelte Kurven eingetragen. Die 2. Frequenz kann der Wechselwirkung in der Reaktionsmatrix ZnS zugeordnet werden⁴⁵⁾. Die gegebene Statistik erlaubt es nicht, eine Frequenzverteilung nach Gleichung (3.12) oder (3.13) anzupassen. Die angegebenen Anisotropien sind gemäß der gemessenen Pulsbreite (Tab. IV.1) auf Zeitauflösung korrigiert; dafür wurde eine Rechteckverteilung angenommen.

- GeCd: Über den gesamten vermessenen Temperaturbereich wird eine volle Wechselwirkungsperiode beobachtet. Deutlicher als bei den anderen Mehrschichtentargets wird hier für Temperaturen $T > 250$ K eine zweite Frequenz beobachtet. Bei dem Tem-

Tab. VI.2:
Ergebnisse der Anpassungen für $^{67}\text{GeCd}$

T	$\nu_Q^{(1)}$	$A_2^{(1)+}$	$\nu_Q^{(2)}$	$A_2^{(2)+}$
[K]	[MHz]	[%]	[MHz]	[%]
169	71,3 (24)	[4,6(29)]		
173	66,5 (18)	4,3 (16)		
211	62,8 (31)	5,0 (24)		
253 [§]	60,4 (9) 59,7 (10)	8,8 (15) 8,4 (15)	80,6 (15)	4,9 (13)
293 [§]	60,3 (6) 58,7 (8)	12,6 (8) 10,6 (12)	85,5 (20)	5,4 (11)
343	58,1 (12)	8,8 (18)		
383 [§]	56,3 (6) 55,8 (5)	12,9 (13) 13,3 (13)	80,5 (20)	3,0 (11)
413	53,7 (8) 53,7 (8)	14,4 (19) 14,5 (17)	79,7 (24)	3,5 (16)
443 [§]	53,5 (5) 53,0 (5)	21,0 (8) 19,5 (9)	78,0 (20)	4,4 (11)

⁺) Werte auf Zeitauflösung gem. Tabelle IV.1 korrigiert
[§]) vgl. Ref. 45

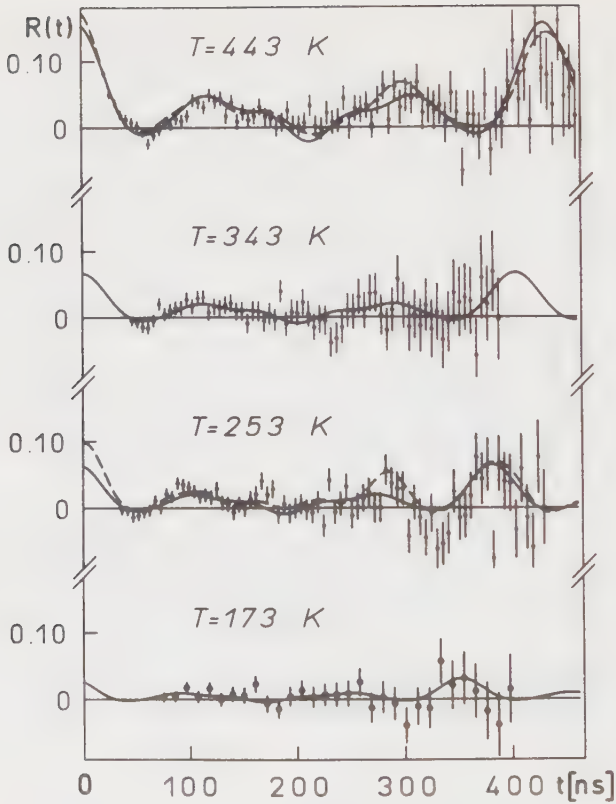


Abb. 6.2:

DPAD-Spektren für $^{67}\text{GeCd}$ bei verschiedenen Temperaturen. Die gestrichelte Kurve entspricht einer Anpassung mit einer zweiten Frequenz.

peraturpunkt von $T = 169 \text{ K}$ konnte nur ein Zähler ausgewertet werden, der andere fiel wegen Untergrundproblemen aus. Der Wert für die Anisotropie wird aus diesem Grund bei der späteren Diskussion in Abschnitt 8 unberücksichtigt gelassen. (In Tabelle VI.2 ist der Wert in Klammern aufgenommen.)

- GeIn : Problematisch ist bei diesen Messungen die nur teilweise beobachtete Periode der Quadrupolwechselwirkung. Aus Abb. 3.5 entnimmt man, daß für hohe Temperaturen die Grenzbedingung Gleichung (3.18) erreicht wird. Die systematischen Fehler, die durch diesen Umstand entstehen können, lassen sich nur schwer abschätzen.

Tab. VI.3:

Ergebnisse der Anpassungen für $^{67}\text{GeIn}$

T [K]	$\nu_Q^{(1)}$ [MHz]	$A_2^{(1)+}$ [%]	$\nu_Q^{(2)}$ [MHz]	$A_2^{(2)+}$ [%]
220	32,9 (21)	8,4 (12)		
273 ^S	25,8 (9)	11,6 (8)		
316 ^S	24,3 (10)	13,2 (12)		
	25,3 (10)	13,3 (12)	85 (2)	6,5 (17)
328 ^S	22,6 (6)	16,9 (9)		
	22,6 (5)	16,3 (9)	82 (2)	4,1 (11)
341	21,4 (9)	13,4 (10)		
353 ^S	18,7 (5)	15,2 (7)		
⁺) Werte auf Zeitauflösung gem. Tab. IV.1 korrigiert ^S) vgl. Ref. 45				

Um einen Anhaltspunkt für die systematischen Fehler, die durch eine fehlerhafte Bestimmung des Untergrundes hervorgerufen werden, zu erhalten, wurde für das Spektrum bei $T = 353 \text{ K}$ der subtrahierte Untergrund U_0 (Gl. (3.15)) um ca. 2%-4% variiert. Die Amplitude und die Frequenz als Funktion des Untergrundverhältnisses, das auf den "wahren" Wert normiert ist ($N = \text{Normierungskonstante}$), wurde in Abb. 6.4 dargestellt ($R = N \cdot U_0(0^\circ) / U_0(90^\circ)$). Der Abbildung ist zu entnehmen, daß durch Fehler in der Untergrundkorrektur, insbesondere bei der Amplitude systematische Fehler auftreten, die durch den χ^2 -Test nicht erkannt werden können.

Die Streuung der Anisotropiewerte für $T > 320 \text{ K}$ sollte darauf zurückzuführen sein.

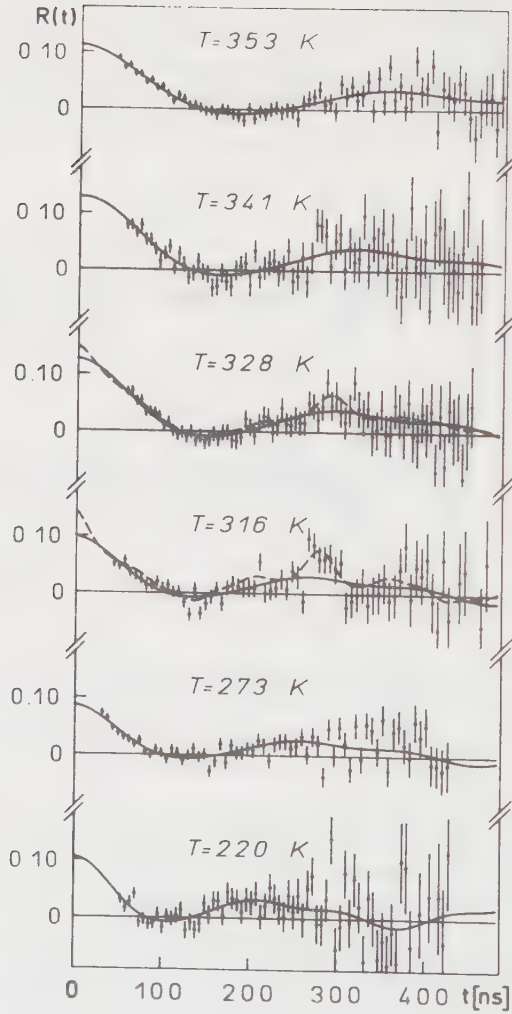


Abb. 6.3:

DPAD-Spektren für $^{67}\text{GeIn}$ bei verschiedenen Temperaturen. Die gestrichelte Kurve entspricht einer Anpassung mit einer zweiten Frequenz.

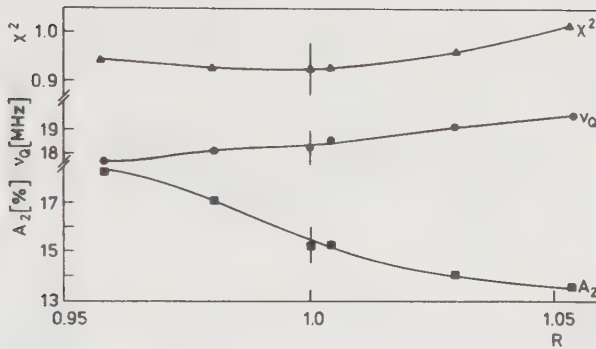


Abb. 6.4:

Abhängigkeit der Anisotropie A_2 und der Wechselwirkungsfrequenz ν_Q von der Untergrundkorrektur R bei $^{67}\text{GeIn}$ ($T = 353 \text{ K}$). Die eingezeichneten Fehler sind Fehler der Anpassung.

- GeSn: Bei den Punkten mit der Temperatur $T = 180 \text{ K}$ und $T = 255 \text{ K}$ sind aufgrund des Ausfalls von Thermoelementen die Temperaturfehler größer als in Abschnitt 4.3 angegeben. Das Gewicht dieser Punkte wird entsprechend kleiner angesetzt.

Der Phasenübergang vom α - zum β -Sn bei $T = 286 \text{ K}$ ⁶⁰⁾ wird ebenso wenig wie bei den Messungen von $^{111}\text{CdSn}$ ¹¹⁾ beobachtet. Neuere Messungen deuten auf eine Unstetigkeit der Gitterkonstanten a bei $T \approx 433 \text{ K}$ hin⁶⁰⁾; eine daraus resultierende Änderung des EFG am Sondenort wurde ebenfalls nicht festgestellt.

An dieser Stelle soll darauf hingewiesen werden, daß sowohl die zusätzlich beobachtete 2. Frequenz als auch die zugeordneten Anfangsanisotropien ein ähnliches Temperaturverhalten wie die Hauptfrequenz besitzen. Ausnahmen bilden lediglich die Punkte bei $T = 253 \text{ K}$ in Cd bzw. $T = 174 \text{ K}$ in Sn. Auf dieses Verhalten der 2. Frequenz wird im folgenden nicht speziell eingegangen.

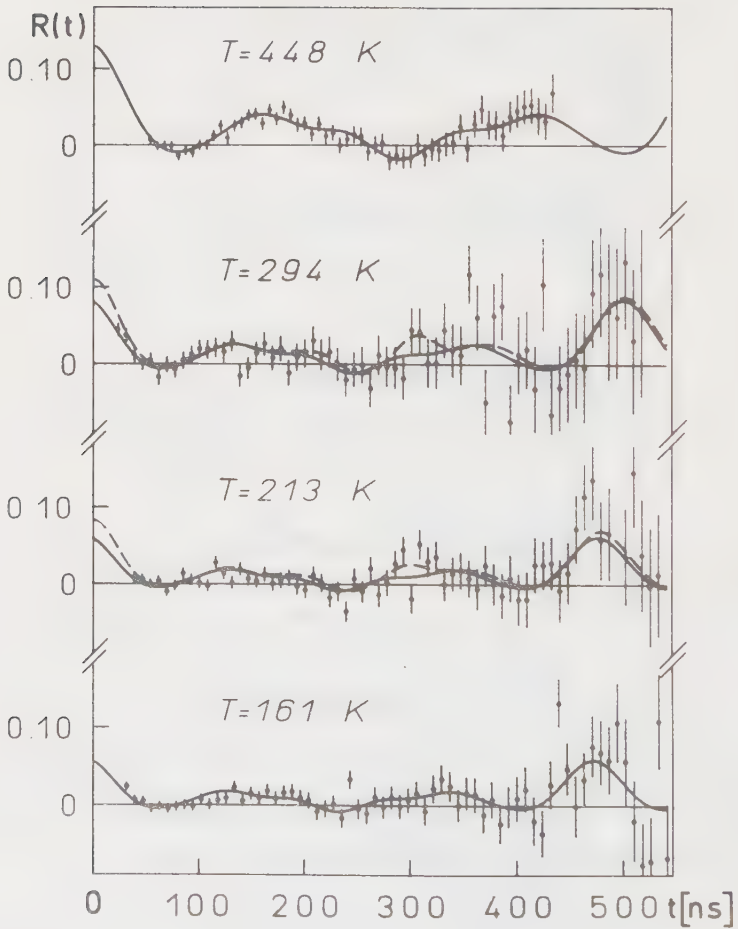


Abb. 6.5:

DPAD-Spektren für $^{67}\text{GeSn}$ bei verschiedenen Temperaturen. Die gestrichelte Kurve entspricht einer Anpassung mit einer zweiten Frequenz.

Tab. VI.4:

Ergebnisse der
Anpassungen für
 $^{67}\text{GeSn}$

T	$\nu_Q^{(1)}$	$A_2^{(1)+}$	$\nu_Q^{(2)}$	$A_2^{(2)}$
[K]	[MHz]	[%]	[MHz]	[%]
144	51,2 (18)	9,1 (21)		
161	50,0 (7)	8,1 (8)		
174	49,4 (8)	8,5 (11)		
	48,8 (9)	8,6 (12)	72,1 (33)	1,8 (13)
180*	49,6 (17)	11,1 (38)		
213	48,7 (8)	9,5 (9)		
	48,6 (8)	19,2 (7)	79 (4)	1,6 (10)
255*	48,1 (15)	10,2 (33)		
	48,1 (14)	11,1 (33)	77,5 (22)	4,2 (21)
294	46,6 (9)	12,2 (14)		
	46,4 (9)	12,3 (14)	75,7 (24)	3,5 (16)
372	42,7 (17)	14,0 (34)		
413	41,0 (7)	17,2 (8)		
	39,1 (8)	16,3 (7)	74,7 (11)	6,7 (12)
448§	39,7 (4)	18,6 (13)		
+) auf Zeitauflösung gem. Tab. IV.1 korrigiert				
*) vgl. S. 42				
§) vgl. Ref. 45				

6.1.3. Ergebnisse für $^{67}\text{ZnCd}$

Die Abb. 6.6 gibt die Modulationsspektren für das ^{67}Zn -Sondenatom wieder, das nach der (α, n)-Reaktion in eine Cd-Matrix implantiert wurde. Die Ergebnisse der Anpassung faßt die Tabelle VI.5 zusammen. Die geringe beobachtete Anisotropie setzt eine Grenze für den tiefsten Temperaturpunkt, die obere Grenze ist durch den Sublimationspunkt des Nickelacetylacetonats gegeben. Das Spektrum bei $T = 373 \text{ K}$ - und andeutungsweise auch das bei $T = 310 \text{ K}$ - zeigt systematische Abweichungen, deren Ursache zum Teil - ähnlich wie bei den Dicktargets - in einer nicht vollständig polykristallinen Struktur begründet sein kann.

Tab. VI.5:

Ergebnisse der Anpassung für
 $^{67}\text{ZnCd}$

T	ν_Q	A_2
[K]	[MHz]	[%]
252	41,7 (8)	2,1 (7)
310	39,5 (4)	3,2 (7)
342	38,9 (6)	3,1 (7)
373§	39,0 (4)	5,1 (9)
§) vgl. Ref. 45		

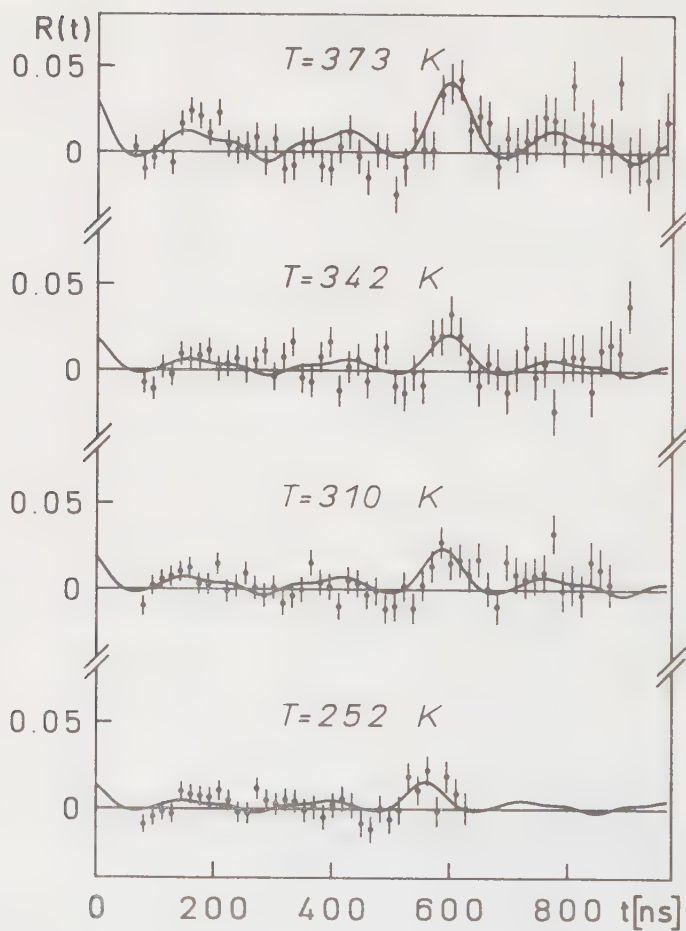


Abb. 6.6:

DPAD-Spektren für $^{67}\text{ZnCd}$ bei verschiedenen Temperaturen.

6.2 Der Gitterplatz des Sondenatoms

Für die vergleichenden Messungen zur Quadrupolwechselwirkung unterschiedlicher Sondenatome in verschiedenen Wirtsmatrizen ist es von fundamentalem Interesse zu wissen, ob die Sondenatome einen substitutionellen Gitterplatz einnehmen. Diese Frage stellt sich nicht nur bei den Ionenstrahlexperimenten (DPAD), sondern sie ist auch für Quellenexperimente (PAC) relevant.

Im allgemeinen gelingt es nicht, mit der DPAD/PAC-Methode den Gitterplatz des Sondenatoms festzustellen. Bis auf wenige Ausnahmen bedarf es ergänzender Experimente wie Channeling, um Aussagen über den Sondenplatz zu machen. Sowohl Stärke, Symmetrie als auch eine einzelne beobachtete scharfe Wechselwirkungsfrequenz sind keine hinreichenden Bedingungen, daß das Fremdatom einen substitutionellen Gitterplatz einnimmt (s.u.).

Lediglich für den Fall CdCd konnte aufgrund eines direkten Vergleichs von γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen mit unterschiedlicher Präparation des isomeren Niveaus^{3,4)} (die Benutzung des ^{111}Cd (48 min) als Mutterisotop gestattet es, a priori einen substitutionellen Gitterplatz für die Sondenatome anzunehmen) und "in-beam"-Messungen am System CdCd ⁴⁾ für Temperaturen $T > 200$ K eindeutig die Folgerung gezogen werden, daß ein substitutioneller Gitterplatz nach der Kernreaktion eingenommen wird.

Gleiche Schlußfolgerungen können von Christiansen und Mitarbeitern⁵⁵⁾ und Bleck⁵³⁾ durch Vergleich von Mößbauerexperimenten am ^{57}Fe in Fe_2O_3 nach Kernreaktionen mit Quellenexperimenten bzw. durch Vergleich der DPAD-Messungen ^{63}Ni in Ni mit Mößbauer- und NMR-Experimenten am ^{61}Ni in Ni gezogen werden.

Man erhält einen Hinweis, daß Rückstoßatome nach einer Kernreaktion nicht immer einen substitutionellen Gitterplatz einnehmen, aus den Messungen in einer Ga-Matrix. Während für die

Systeme $\text{GaGa}^{61)}$ und $^{111}\text{CdGa}^{62)}$ ein Asymmetrieparameter $\eta \approx 0,1$ beobachtet wird, mißt man bei den Ionenstrahlexperimenten für $^{73}\text{AsGa}^{63)}$ und $^{69}\text{GeGa}^{50)}$ $\eta \approx 0,7$. Diese Unterschiede könnten auf unterschiedliche Gitterplätze zurückzuführen sein. Die vorläufigen Messungen am Einkristall bestätigen diese Vermutung⁶²⁾.

Damit kann man für die meisten DPAD-Messungen nur feststellen, daß ein einheitlicher Gitterplatz eingenommen wird, wenn eine scharfe Frequenz beobachtet wird.

Ist zusätzlich die maximal beobachtete Amplitude im Festkörper gleich der in der flüssigen Phase gemessenen, so kann man schließen, daß für dieses spezielle Experiment alle Sondenatome den gleichen Gitterplatz im Wirtsgitter einnehmen. Für verschiedene Sondenatome muß dies nicht notwendigerweise der gleiche Gitterplatz sein.

Im Gegensatz zu den Mößbauer- und PAC-Experimenten, die im thermischen Gleichgewicht vorgenommen werden, ist bei den Ionenstrahlexperimenten die Umgebung durch den Abbremsprozeß des Rückstoßatoms (Verlagerungskaskade) stark gestört und befindet sich in einem extremen Ungleichgewicht. Die Ausheilprozesse sollten nach Rechnungen von Doran⁶⁴⁾ in der Größenordnung von μs - also innerhalb der Lebensdauer der hier verwendeten isomeren Niveaus - liegen. Damit "sieht" das Sondenatom eine stark gestörte Umgebung, die Einfluß auf die Meßergebnisse nehmen kann. Die oben angeführten Messungen von $\text{CdCd}^{4)}$ ($T > 200 \text{ K}$) und die Messungen zur magnetischen Hyperfeinwechselwirkung⁵³⁾ zeigen, daß man trotzdem unverfälschte Meßergebnisse erhalten kann, lediglich der Meßeffect (Amplitude des Modulationsspektrums) wird verkleinert (siehe dazu Abschnitt 8).

Bisher gibt es keine Regeln - wie etwa die Hume-Rothery-Regeln für die Löslichkeit⁶⁵⁾ -, die Kriterien für den substitutionellen Einbau von Fremdatomen nennen, jedoch sollten chemische Ähnlichkeit von Fremdatom und Wirtsgitteratom, annähernd gleiche Ionenradien und gute Löslichkeit den Einbau auf substitutionellen Gitterplätzen begünstigen.

Für zwei chemisch sehr ähnliche Wirtssubstanzen wie Cd und Zn wird für die Sonde $^{67}\text{GeZn}$ im Vergleich zum System ZnZn deutlich ein Unterschied in der Temperaturabhängigkeit gemessen, während $^{67}\text{GeCd}$ einen sehr ähnlichen Temperaturverlauf wie CdCd hat. Das Verhältnis der Ionenradien von ^{67}Ge und den beiden Wirtsgitteratomen Zn und Cd beträgt 1,2 bzw. 0,96, und die Löslichkeit von Ge in Cd bzw. Zn⁶⁶⁾ ist annähernd gleich. Das Massenverhältnis unterscheidet sich aber für das System GeCd um den Faktor 2 von dem für das System GeZn . Man sollte daher eher für das System GeCd größere Abweichungen feststellen. Die Experimente zeigen aber ein umgekehrtes Verhalten. Das ähnliche Temperaturverhalten von $^{67}\text{GeCd}$ und CdCd läßt für diesen Fall auf einen substitutionellen Gitterplatz schließen. Aus den oben genannten Gründen ist nicht zu erwarten, daß Ge in Zn einen anderen Gitterplatz einnimmt als Ge in Cd. Man kann daher auch für $^{67}\text{GeZn}$ einen substitutionellen Gitterplatz vermuten. Das unterschiedliche Temperaturverhalten sollte andere Quellen haben. Für $^{67}\text{GeIn}$ und $^{67}\text{GeSn}$ wird wegen der ähnlichen Verhältnisse wie beim $^{67}\text{GeCd}$ ebenfalls ein substitutioneller Gitterplatz angenommen. Inwieweit diese Annahme gerechtfertigt ist, könnte durch Channeling-Experimente geprüft werden. Möglicherweise könnten PAC-Experimente einige zusätzliche Hinweise auf den Gitterplatz des Sondenatoms liefern. Ein Experiment, mit Hilfe der β - γ -Winkelkorrelation die Quadrupolwechselwirkung von ^{71}Ge in Zn-Einkristallen zu messen, scheiterte an der zu kleinen Anisotropie dieser β - γ -Korrelation.

6.3 Diskussion der Meßergebnisse

Der Temperaturverlauf der Quadrupolwechselwirkungsfrequenz für $^{67}\text{GeZn}$ zeigt für Temperaturen $T < 200\text{ K}$ (vergl. Abb. 7.1) Abweichungen vom erwarteten Temperaturverlauf zu höheren Frequenzen hin. Vorausgesetzt es liegt kein Phasenumwandlungspunkt im betrachteten Temperaturintervall - dafür gibt es bei Zink keine Anzeichen⁶⁰⁾ - sollte man ein Verhalten wie z.B. bei $\text{InIn}^{1)}$ messen. Auch Temperaturfehler kommen für die Abweichungen nicht in Betracht; lediglich geringe Verschiebungen zu höheren Temperaturen, die durch den Strahl als zusätzliche Wärmequelle hervorgerufen werden, sind denkbar (Abschnitt 4.3). Damit könnten aber nur Abweichungen zu kleineren Frequenzen erklärt werden. Außerdem zeigen die Spektren für die Schichttargets $^{67}\text{GeSn}$ und $^{67}\text{GeCd}$ andeutungsweise einen ähnlichen Effekt. Hierbei wurden jedoch ein veränderter Targetaufbau und eine andere Thermoelementanordnung verwendet. Die für Temperaturen $T < 200\text{ K}$ zusätzlich beobachtete gaußförmige Verteilung der beobachteten Wechselwirkungsfrequenz läßt jedoch zu, als Ursache der Frequenzverschiebung Strahlenschäden des Gitters anzunehmen.

Bisher gibt es keine direkten Messungen von Feldgradienten, hervorgerufen von Fehlstellen oder Fremdatomen, in nächster Nachbarposition in nichtkubischen Metallen. Messungen von durch Fehlstellen^{67,68)} sowie Fremdatome^{25,26)} in nn-Position hervorgerufene Feldgradienten in kubischen Metallen liegen in der Größenordnung von 10^{17} V/cm^2 . Die durch Fehlstellen erzeugten Feldgradienten im hexagonalen Zink sollten etwa von gleicher Größenordnung sein. Der aus dem gittertypischen und den durch Fehlstellen erzeugten EFG resultierende Feldgradient kann größer oder kleiner als der des ungestörten Gitters sein, je nach relativem Vorzeichen und Richtung der beiden Anteile. Für $^{111}\text{CdCd}$ wird z.B. für tiefe Temperaturen ($T < 200\text{ K}$) eine Abweichung der Frequenzen bei den Ionenstrahlexperimenten gegenüber den γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen festgestellt, die ebenfalls auf Strahlenschäden zurückgeführt werden muß⁴⁾.

Den Tabellen VI.1-VI.4 entnimmt man, daß sich die Temperaturabhängigkeiten für die einzelnen Wirtsmatrizen erheblich unterscheiden. Während für $^{67}\text{GeZn}$ im Temperaturbereich zwischen $T \approx 200 \text{ K}$ und $T \approx 400 \text{ K}$ eine Änderung der Wechselwirkungskonstanten von ca. 10% beobachtet wird, gilt für $^{67}\text{GeSn}$ und $^{67}\text{GeCd}$ ca. 15% und für $^{67}\text{GeIn}$ sogar ca. 45% (bezogen auf den Wert bei $T \approx 200 \text{ K}$). Man stellt weiterhin fest, daß die Temperaturabhängigkeiten für $^{67}\text{GeZn}$ und $^{67}\text{GeIn}$ von denen der "reinen" Systeme stärker abweichen. Auf dieses unterschiedliche Temperaturverhalten der verschiedenen Wirtsmatrizen und das der Fremdatome wird in Abschnitt 7 näher eingegangen.

Diskrepanzen treten bei der Anfangsamplitude für $^{67}\text{GeZn}$ bei Temperaturen $T > 600 \text{ K}$ auf. Der Wert von Sielemann³¹⁾ (vergl. auch Ref. 50) liegt mit $A_2 = 0,28(2)$ deutlich oberhalb der hier gemessenen maximalen Werte $A_2 \approx 0,2$. Da unter gleichen Bedingungen wie in dieser Arbeit gemessen wurde - die Targets stammen aus Zink gleicher Lieferung, und es wurde die gleiche Targetanordnung verwendet - kann die Differenz in der Anfangsamplitude nicht auf Targetverunreinigungen, systematische Temperaturverschiebungen o.ä. zurückzuführen sein.

Die unterschiedlichen Einschußenergien der α -Teilchen (Ref. 31: $E_\alpha = 13,3 \text{ MeV}$, diese Arbeit vergl. Tab. IV.1) sollten ebenfalls diesen Unterschied nicht bewirken. Für das Schichttarget $^{67}\text{GeSn}$ wurde mit Einschußenergien von 12,7 und 15 MeV gemessen; die Anisotropien sind für beide Einschußenergien im gesamten Temperaturbereich miteinander verträglich, obwohl Energieunterschiede bei den Mehrschichtentargets stärkeren Einfluß auf die Anisotropie ausüben sollten.

Bei der gegebenen Statistik können Dämpfungserscheinungen nicht beobachtet werden, weil nur eine Wechselwirkungsperiode zu sehen ist; aus den Messungen von $^{69}\text{GeZn}$ ^{50,69)} kann jedoch geschlossen werden, daß Dämpfungen nicht Ursache der unterschiedlichen Anfangsanisotropie sein können.

Eine Neuauswertung des alten Spektrums (Ref. 50) deuten auf eine starke Abhängigkeit der Anfangsanisotropie vom Beginn des Auswertebereichs ab. Ursache können Abweichungen des Modulationsspektrums im Anfangsbereich sein. Wird der Beginn des Auswertebereichs >50 ns gewählt, erhält man konstante Anfangsanisotropien, die mit denen in dieser Arbeit gemessenen verträglich sind.

Um die Verhältnisse bei den Schichttargets zu überprüfen, wurde am $^{69}\text{GeSb}$ eine Messung bei $T = 473$ K durchgeführt. Die Abb. 6.7 zeigt das Zeitspektrum für diese Messung ($\nu_Q = 18,90(9)$ MHz, $A_2 = 0,07(3)$); man entnimmt ihm, daß Dämpfungen auftreten. Der χ^2 -Test gibt der Anpassung mit dem Dämpfungsfaktor aus Gleichung (3.14) den Vorzug, d.h. bei diesem Schichttarget treten gegenüber dem Dicktarget zusätzliche Störungen auf, die a) durch die Diffusion von Atomen der Reaktionsmatrix in die Wirtsmatrix und/oder b) durch Verunreinigungen bei der Targetherstellung - z.B. abgedampftes Tiegelmateriale - hervorgerufen werden könnten. Es ist aber nicht auszuschließen, daß ein für das Wirtsgitter Sb typischer Mechanismus auftritt. Aus der Anpassung erhält man die Relaxationszeit $\tau_R = 4,0(3,0)$ μs . Wegen der sehr ähnlichen Quadrupolmomente der $9/2$ -Zustände in ^{67}Ge und ^{69}Ge sind für beide Kernsonden gleiche Effekte zu erwarten.

Die Güte der Spektren für die Cd, In- und Sn-Mehrschichtentargets lassen eine Anpassung einer Relaxation nicht zu. Eine grobe Abschätzung - legt man die gleiche Relaxationszeit wie für $^{69}\text{GeSb}$ zugrunde - ergibt für die Sn- und Cd-Targets Korrekturen der Anisotropie von ca. 10% des angegebenen Wertes, für das In-Target sollten sich wegen der tieferen Temperatur und der kleineren Frequenz etwas größere Korrekturen ergeben. Ein Vergleich der Tabellen VI.1-VI.4 zeigt, daß bei Berücksichtigung dieser Korrektur die maximale Anfangsanisotropie sowohl für diese Mehrschichtentargets als auch für das Dicktarget annähernd gleich sind. In Verbindung mit der Beobachtung,

dass nur ein geringer Anteil der Sondenatome in der Reaktionsmatrix gestoppt wird, kann man damit feststellen, dass nahezu eine vollständige Implantation von der Reaktionsmatrix in die Wirtsmatrix erfolgt. Systematische Fehler durch falsche Schichtdickenwahl, unterschiedliche Targetanstellwinkel und verschiedene Teilchenenergien können im Rahmen der Genauigkeit vernachlässigt werden.

Im Gegensatz dazu wird bei dem Nickelacetylacetonat-Kadmium-Target eine Reduktion der Anfangsanisotropie auf Werte um 25% beobachtet, wenn man die von Bertschat und Mitarbeitern³⁸⁾ bei ähnlicher α -Energie und $T = 387$ K im ferromagnetischen Nickel gemessene Anisotropie $A_2 \approx 0,2$ zugrunde legt. Zeitz⁴⁴⁾ beobachtete bei gleicher α -Energie und Raumtemperatur $A_2 \approx 0,17$ und bei $T = 620$ K nur $A_2 \approx 0,14$. Mit diesen Werten erhält man eine Abschwächung zwischen 70% und 60%. Bertschat und Mitarbeiter beobachten über den gesamten Temperaturbereich für ⁶⁷ZnNi eine nahezu konstante Amplitude. Die unterschiedliche maximale Anfangsanisotropie kann man nach Bertschat³⁸⁾ auf unterschiedliche Probenherstellung und/oder -behandlung zurückführen.

Setzt man wiederum wie bei den anderen Schichttargets eine Relaxation voraus - die Zeitspektren in Abb. 6.6 widersprechen einer solchen Annahme nicht - so erhält man aus einer groben Abschätzung Relaxationszeiten von 0,5-0,6 μ s, je nach der zugrundeliegenden maximalen Anfangsanisotropie. Eine Anpassung an das Spektrum bei $T = 383$ K mit einem Dämpfungsfaktor gemäß Gleichung (3.14) ergibt eine Relaxationszeit von $0,4^{+0,7}_{-0,4}$ μ s, aber keine Verbesserung des χ^2 -Tests.

Da einerseits für die Abschätzung die maximale Anisotropie nicht sicher bekannt und andererseits die Anpassung einer Relaxation wegen mangelnder Statistik nicht eindeutig ist, kann nicht ganz ausgeschlossen werden, daß durch falsche Schicht-

dicken eine nicht vollständige Implantation in die Wirtsmatrix erfolgt ist, womit eine Reduktion der Anfangsanisotropie verbunden wäre. Außerdem gibt es für die bei diesem Target gegenüber den anderen Mehrschichtentargets um den Faktor 10 kleineren Relaxationszeiten keine plausible Erklärung. Wegen dieser Unsicherheiten wurden in der Tabelle VI.5 und Abb. 6.6 nur die Anpassungen ohne Dämpfung berücksichtigt.

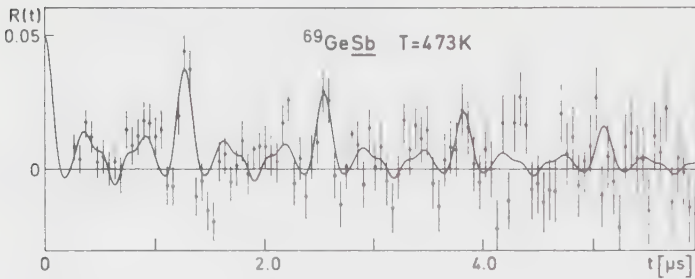


Abb. 6.7:

Elektrische Quadrupolwechselwirkung des isomeren $9/2$ -Zustandes von ^{69}Ge ($\tau_R = 4,04 \mu\text{s}$) in polykristallinem Antmon.

7. Vergleich der Temperaturabhängigkeiten

Die Berechnung des Betrages des EFG in Metallen bereitet erhebliche Schwierigkeiten und kann für die wenigsten Metalle mit einiger Verlässlichkeit angegeben werden. Den Temperaturgang der Quadrupolwechselwirkung theoretisch zu bestimmen, ist ebenfalls noch nicht für eine Reihe von Metallen gelungen. Ausnahme scheinen nur die 4-f-Übergangsmetalle zu machen, bei denen der Temperaturgang im wesentlichen durch den Gitteranteil und den 4-f-Elektronenanteil bestimmt wird⁷⁾.

In diesem Abschnitt sollen das unterschiedliche Temperaturverhalten der verschiedenen Wirtsmatrizen und der Einfluß der Fremdatomsonden auf dieses Temperaturverhalten untersucht werden. Im ersten Teil dieses Abschnitts werden die bisherigen theoretischen bzw. empirischen Ansätze vorgestellt und diese kurz erläutert; im zweiten Teil werden die gemessenen Temperaturabhängigkeiten - ergänzt durch Literaturwerte - analysiert und die Ergebnisse mit den beschriebenen Theorien verglichen.

7.1. Ansätze zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit des EFG

Grundsätzlich unterscheiden sich die Ansätze für die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung in der Annahme, welche Quellen diese besitzt: (1) Gitterparameteränderungen und thermische Umbesetzung der Leitungselektronen (Watson und Mitarbeiter¹⁹⁾) sowie (2) Phononenwechselwirkung (Quitmann und Mitarbeiter⁷⁰⁾) und (3) Quadrupolorientierungswellen (Heubes⁷¹⁾) werden als Ursache betrachtet.

(1) Einen ersten theoretischen Ansatz für die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung in Metallen lieferten Watson und Mitarbeiter¹⁹⁾, dabei setzen sie die übliche Aufteilung des EFG gemäß Gleichung (2.20) voraus. Zwei wesentliche Anteile der Temperaturabhängigkeit werden unterschieden:

a) die Abhängigkeit des Gitteranteils, bestimmt durch die Temperaturabhängigkeit der Gitterkonstanten, berechnet nach Gleichung (2.17)

b) die durch die thermische Energie hervorgerufenen Umbesetzungen von Elektronenzuständen in der Nähe der Fermikante.

(zu a) Die Temperaturabhängigkeit des Gitteranteils kann die beobachtete Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung in den hier betrachteten s-p-Metallen in keinem Fall erklären (es wird hier nur der reine Gitteranteil eq_{latt} betrachtet; $(1-\gamma_\infty)$ und $(1+\delta)$ werden als temperaturunabhängig angesehen, so daß die Temperaturabhängigkeit des ionischen Anteils zum EFG - 1. Term der Gleichung (2.20) - nur von eq_{latt} abhängt). Während experimentell mit steigender Temperatur eine Abnahme des EFG für alle Sonden in den Metallen Zn, Cd und Sn beobachtet wird, erhält man für den nach Gleichung (2.17) berechneten Gitteranteil des EFG eine Zunahme mit steigender Temperatur. Lediglich die Matrix In macht eine Ausnahme, Gitterbeitrag und experimentell bestimmter EFG haben das gleiche Vorzeichen und ähnliches Temperaturverhalten¹⁾. (Die Vorzeichen der Wechselwirkungen kann man einer Arbeit von Raghavan und Mitarbeitern⁷²⁾ entnehmen).

(zu b) Die thermische Änderung der Elektronendichte $n(E_F)$ (vergl. Gleichung (2.19)) an der Fermikante wird proportional der Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion angesetzt, d.h. mit höherer Temperatur werden auch Zustände oberhalb der Fermikante besetzt; dabei wird angenommen, daß die Elektronendichte innerhalb der Wigner-Seitz-Zelle konstant bleibt (Erhaltung der Gesamtladung im Kristall). Außerdem werden thermische Umbesetzungen in einzelnen Regionen der Fermioberfläche hervorgerufen, damit ändert sich auch die Topologie der Fermioberfläche. Abweichungen von der sphärischen Symmetrie im Impulsraum sind aber Ausdruck einer nicht isotropen räumlichen Ver-

teilung der Leitungselektronen¹⁸⁾ (d.h. durch die thermisch induzierte Umbesetzung in einzelnen Teilen der Fermioberfläche ändert sich die Anisotropie der Ladungsverteilung und damit auch der EFG).

Explizit können Watson und Mitarbeiter diese Umbesetzung als Funktion der Temperatur nicht angeben, detaillierte Kenntnis nicht nur der Zustandsdichte $n(E_F)$ für jede Region der Fermioberfläche ist nötig. Lediglich für den ersten Anteil des Repopulationseffektes - also die Umbesetzung gemäß der Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion - kann ein funktionaler Zusammenhang angegeben werden:

$$\Delta e q = e q_{ce}^{int}(T) - e q_{ce}^{int}(T=0) \sim T^2 \quad (7.1)$$

Der Proportionalitätsfaktor enthält die Elektronendichte an der Fermikante und die Änderung der $\ell = 2$ Multipolkomponente mit der Energie an der Fermikante. Die Autoren schließen einen Einfluß der Phonon-Elektron-Wechselwirkung auf die Zustandsdichte $n(E_F)$ der Elektronen an der Fermikante aus. Es wird gezeigt, daß die Umbesetzung der Elektronenzustände unabhängig vom Schwingungszustand des Kristalls ist.

(2) Quitmann und Mitarbeiter⁷⁰⁾ betrachten analog zu einem Modell von Bayer sowie von Kushida und Mitarbeitern⁷³⁾, das für Molekül- bzw. Ionenkristalle entwickelt wurde, den Einfluß der thermischen Gitterschwingungen der Nachbaratome auf den EFG am Sondenatom. Die Amplitude der Gitterschwingungen wird dabei als temperaturabhängig angesetzt. Mit der Annahme, daß die mittlere quadratische Auslenkung $\langle x^2 \rangle$ der Nachbaratome aus der Ruhelage beschrieben wird durch die Gleichung

$$\langle x^2 \rangle = \frac{3 \hbar^2}{M^* k_B} \theta_D^{-2} T \left(\Phi(y) + \frac{1}{4} \right) \quad (7.2)$$

($y = \theta_D/T$; θ_D ist die Debyetemperatur des Gitters, M^* die Masse der schwingenden Gitteratome, und $\Phi(y)$ die Debye-funktion (man vergleiche Ref. 74)),

kann der temperaturabhängige Anteil des elektrischen Feldgradienten $q_2 \approx q^* \cdot \langle x^2 \rangle$ bestimmt werden. Es wird vorausgesetzt, daß der Parameter q^* temperaturunabhängig ist. Der Anteil q_0^* des EFG, den die benachbarten Ionen am Ort des Sondenatoms hervorrufen, wird durch "Gittersummation" - wobei ein abgeschirmtes Coulombpotential Verwendung findet - berechnet; der gesamte Feldgradient ergibt sich dann zu:

$$q = \xi (q_0^* + q^* \langle x^2 \rangle) \quad (7.3)$$

mit ξ als effektivem Sternheimerfaktor, der ebenfalls ein freier Parameter ist.

Die Temperaturabhängigkeit für InIn kann damit gut wiedergegeben werden⁷⁰⁾, für die Systeme $^{111}\text{CdCd}$ und $^{111}\text{CdSn}$ sind die Ergebnisse ebenfalls befriedigend⁷⁵⁾. Es kann nicht geklärt werden, ob die noch verbliebenen Abweichungen den von Watson und Mitarbeitern¹⁹⁾ beschriebenen Änderungen der Zustandsdichte zugeschrieben werden müssen.

Eine Vereinfachung des Ausdrucks (7.2) ergibt sich, wenn man nur den Temperaturbereich oberhalb der Debyetemperatur betrachtet; für $T > \theta_D$ gilt dann $[\phi(y) + y/4] \approx 1$. Man erhält für die Hochtemperaturnäherung also einen linearen Frequenzverlauf als Funktion der Temperatur.

Ist das Sondenatom Fremdatom in der Matrix, so ist zu berücksichtigen, dass sich dadurch das "lokale" Schwingungsspektrum ändert⁷⁶⁾. Die Änderung des Schwingungsspektrums äussert sich in einer veränderten Debyetemperatur. Diese lokale oder effektive Debyetemperatur wird nach Steyert und Taylor⁷⁷⁾ beschrieben als:

$$\theta_{eff} = \sqrt{\frac{M}{M'} \cdot \frac{f^2}{f'}} \theta_D \quad (7.4)$$

γ stellt dabei die elastische Kopplung zwischen den Matrixatomen, γ' die Kopplung zwischen Matrix- und Fremdatomen dar,

M' ist die Masse des Fremdatoms. Aus den Gleichungen (7.2), (7.3) und (7.4) erhält man, wenn man berücksichtigt, daß in (7.2) $M^* = M'$ zu setzen ist, für die Hochtemperaturnäherung

$T \gg \Theta_D$:

$$q = \xi \left(q_0^* + q^* \frac{\gamma}{\gamma'} \frac{3\hbar^2}{4k_B \Theta_D} T \right) \quad (7.5)$$

Das Verhältnis γ/γ' wird von dem jeweiligen Fremdatom beeinflusst. Die Temperaturabhängigkeit ist damit nicht unabhängig von dem Verhältnis der elastischen Kopplung der jeweiligen Fremdatome an die Wirtsgitteratome. Für die hier betrachteten Systeme gibt es bisher keine Messungen für γ/γ' . Aus makroskopischen Messungen können nur schwer Rückschlüsse auf dieses Verhältnis gezogen werden. Steyert und Taylor⁷⁷⁾ bestimmen für Fe in Cu und Pd aus dem Debye-Waller-Faktor das Verhältnis $\gamma/\gamma' \approx 0,83$ bzw. 1,02. Wegen der 3d-Elektronenstruktur von Fe sind die Ergebnisse auf die hier betrachteten s-p-Metalle nicht direkt übertragbar, jedoch sollte dies als Anhaltspunkt gelten, daß die Abweichungen in dieser Größenordnung sein können. Bei der Analyse der Daten in Abschnitt 7.2 wird $\gamma/\gamma' = 1$ gesetzt.

Aufgrund der Tatsache, dass in q^* die Änderung des EFG von der Zustandsdichteänderung ebenfalls enthalten ist, ist es ohne weitere Informationen nicht möglich, beim Einbau eines Fremdatoms zu entscheiden, welches der wesentliche Beitrag für bei Änderung des Temperaturganges ist.

Weiterhin entnimmt man der Gleichung, dass die Temperaturabhängigkeit nach diesem Ansatz unabhängig von der Masse des Sondenatoms sein sollte. Ein Ergebnis vorwegnehmend, kann man feststellen, dass die Stärke der Temperaturabhängigkeit für $^{67}\text{ZnCd}$ - $^{111}\text{CdCd}$ und $^{111}\text{CdZn}$ - $^{67}\text{ZnZn}$ diese erwartete Massenunabhängigkeit auch zeigt.

(3) Die gemessenen Temperaturabhängigkeiten in den s-p-Metallen, eingeschlossen die für Fremdatomesonden, werden bis auf wenige Ausnahmen durch die Funktion

$$eq(\tau) = eq(\tau=0) \left(1 + m T^{3/2} \right) \quad (m < 0) \quad (7.6)$$

beschrieben¹¹⁾. Insbesondere die mit größter Genauigkeit vermessenen reinen Systeme InIn¹⁾ und SbSb⁷⁸⁾ zeigen im ganzen Temperaturbereich eine sehr gute Übereinstimmung mit dieser empirischen Relation. Lediglich in den Übergangsmetallen ergeben sich Unterschiede, die z.B. bei den seltenen Erden durch den Beitrag der 4f-Elektronen erklärt werden können (s.o.).

Bisher gibt es jedoch keine befriedigende theoretische Erklärung dieses empirischen Gesetzes. P. Heubes⁷¹⁾ versucht, in Analogie zur thermischen Anregung der Magnonen das für diese von Bloch gefundene $T^{3/2}$ -Gesetz auf die Quadrupolwechselwirkung zu übertragen:

Grundlegende Annahme dabei ist die Existenz einer Wechselwirkung zwischen atomaren Quadrupolmomenten - induziert durch die nichtkubische Symmetrie der Matrix - d.h. ein neuer Anregungszustand im Festkörper wird definiert.

Bei dieser formalen Übertragung der Spinwellentheorie ergeben sich zwei Probleme: einmal wird eine skalare Wechselwirkung definiert, die a priori für die Quadrupolwechselwirkung nicht anzunehmen ist, man würde eine tensorielle voraussetzen; zweitens ist die bei der Spin-Spin-Wechselwirkung gegebene Orientierung nicht vorhanden, es sollte also eine Entartung bezüglich der räumlichen Orientierung vorhanden sein. Das Modell fordert weiterhin Wechselwirkungskonstanten für die so definierte Quadrupolwechselwirkung, die bisher in anderen Experimenten nicht beobachtet wurden.

7.2 Analyse der gemessenen Temperaturabhängigkeiten

Die Stärke der Temperaturabhängigkeit des EFG ist in erster Näherung charakteristisch für das jeweilige Wirtsgitter wie z.B. der Vergleich der Resultate für die Messungen von ⁶⁷ZnZn²⁾, ¹¹¹CdCd^{3,4)} und InIn¹⁾ mit denen aus dieser Arbeit zeigt. Ein Einfluß des Fremdatoms auf die Temperaturabhängigkeit des EFG

wurde bei den bisherigen Messungen für diese Metalle nicht berücksichtigt^{22,79)}. Die Messungen dieser Arbeit zeigen aber, daß - wie in Abschnitt 6.3 bereits erwähnt - für $^{67}\text{GeZn}$ und $^{67}\text{GeIn}$ deutliche Abweichungen von der Temperaturabhängigkeit der "reinen" Systeme beobachtet wird. Man sollte daher annehmen, daß auch bei anderen Fremdatomsystemen - wenn auch nicht so ausgeprägt - ähnliche Abweichungen vorhanden sind. Diese Abweichungen könnten durch die vom Fremdatom hervorgerufene Ladungs- und Gittersymmetriestörungen bedingt sein.

Die Analyse der Meßdaten wird daher unter zwei Gesichtspunkten erfolgen: Es sollen

- a) die unterschiedliche Stärke der Temperaturabhängigkeit für die einzelnen Wirtsgitter und
- b) der Einfluß der Fremdatomsonde auf die Stärke der Temperaturabhängigkeit des EFG innerhalb eines Wirtsgitters untersucht werden.

Die temperaturabhängige Meßgröße ist die Quadrupolkopplungskonstante, sie enthält das meist nur ungenau bekannte Quadrupolmoment, Normierung auf einen beliebigen Temperaturpunkt ermöglicht es, vom Quadrupolmoment des jeweiligen Zustandes unabhängig zu werden.

Als Maß für die Stärke der Temperaturabhängigkeit des EFG soll daher im folgenden der Betrag des Differentialquotienten

$$\left| \frac{1}{q_w} \frac{dq}{dT} \right|$$

verstanden werden. Eine einfache Möglichkeit für den Vergleich des Temperaturverlaufs bietet sich an, wenn es gelingt, diesen Verlauf zu linearisieren. Die systematische Untersuchung der Steigung sollte es dann gestatten, Änderungen in der Stärke des Temperaturganges für die Matrix und für die Fremdatome zu erkennen.

Aufgrund der unter 7.1 erwähnten Ansätze soll zuerst der funktionale Zusammenhang zwischen der Temperatur und der Quadrupolwechselwirkung im Hinblick auf die experimentellen Ergebnisse diskutiert werden.

Eine Überprüfung der T^2 -Abhängigkeit, wie sie von Watson und Mitarbeitern¹⁹⁾ vorgeschlagen wird, muß anhand des Leitungselektronenanteils geschehen. Um diesen durch die Leitungselektronen erzeugten EFG aus den experimentell bestimmten Kopplungskonstanten gemäß Gleichung (2.20) zu erhalten, müssen zusätzlich zum Gitteranteil, der sich nach Gleichung (2.17) bestimmen läßt, noch der Sternheimerfaktor, das Vorzeichen der Wechselwirkung und das Quadrupolmoment des Sondenatoms bekannt sein. Für das System $^{111}\text{CdCd}^{71})$ sind sowohl die Kopplungskonstanten über einen weiten Temperaturbereich (4,2 K $< T <$ 572 K) als auch alle notwendigen Größen zur Berechnung des Leitungselektronenanteils zuverlässiger als für die anderen s-p-Metalle bekannt. Der Wert für das Quadrupolmoment des 5/2-Zustandes wird der Tabelle III.1 entnommen, der Sternheimerfaktor ist nach Ref. 23 $(1-\gamma_\infty) = 30,3$, das Vorzeichen der Wechselwirkung ist nach Messungen von Raghavan und Mitarbeitern⁵⁾ positiv. Gemäß Gleichung (2.17) wird der Gitteranteil berechnet. Die benutzten Gitterkonstanten entstammen Ref. 60, Zwischenwerte sind graphisch interpoliert, $Z = 2$ wird angesetzt, die Anteile δ und R_{CE} werden vernachlässigt (vergl. Abschnitt 2.2). Anschließend wurde mit dem berechneten Leitungselektronenanteil der Ausdruck Δ_{eq} (Gleichung 7.1) gebildet. Die gleichen Rechnungen wurden auch für $Q = 0,5$ b (z.B. Ref. 79) und $(1-\gamma_\infty) = 16^{18)}$ durchgeführt, Werte, die ebenfalls für das Quadrupolmoment bzw. den Sternheimerfaktor von Cd benutzt werden. Diese Unterschiede sollten etwa den maximalen Fehler dieser Größen abdecken (wegen der Relevanz der Werte vergleiche man die Diskussion bei Sielmann^{8,11)}).

Die Funktion I: $\Delta_{eq} = aT^2 + bT$ (7.7)

wobei der lineare Term in T in Ergänzung von Gleichung (7.1) für die thermische Umbesetzung in Teilen der Fermioberfläche angesetzt wird,

die Funktion II: $\Delta_{eq} = a'T^2$ (7.8)

gemäß Gleichung (7.1)

und die Funktion III: $\Delta_{eq} = mT^{1,5}$ (7.9)

wurden an die berechneten Daten angepaßt.

Man entnimmt der Tabelle VII.1, daß die Anpassungen für die Funktion I in allen Fällen besser ist als für die Funktionen II und III, im Falle von $Q = 0,77$ b und $(1-\gamma_{\infty}) = 30,3$ ist die Anpassung auch für die Funktion II besser als für die Funktion III. Es ist dabei jedoch zu beachten, daß die Funktion I einen zusätzlichen Parameter enthält.

Tab. VII.1:

Ergebnisse des χ^2 -Tests für die Anpassung verschiedener Funktionen an den Leitungselektronenanteil Δ_{eq} des elektrischen Feldgradienten für CdCd (vgl. Text).

Q[b]	1 - γ_{∞}	χ^2 für Funktion		
		I	II	III
0,77	30,3	0,5(2)	2,5(11)	3,7(17)
	16	3,2(16)	7,4(33)	5,1(23)
0,5	30,3	1,0(5)	21,0(45)	10,3(46)
	16	0,6(5)	21,2(95)	2,1(9)

Diese Betrachtung kann keinen Beweis dafür liefern, daß die Theorie von Watson und Mitarbeitern¹⁹⁾ die Temperaturabhängigkeit des Leitungselektronenanteils korrekt wiedergibt, sie soll nur zeigen, daß bei der Genauigkeit der

vorliegenden Daten ein solcher Ansatz für den Temperaturgang nicht auszuschliessen ist, es sei denn, es können zusätzliche Argumente dagegen angeführt werden.

Ein großer Teil der bisher gemessenen Temperaturabhängigkeiten in den s-p-Metallen wird sowohl für die "reinen" Systeme als auch für die Fremdatomsysteme durch die von Heubes und Mitarbeitern¹¹⁾ angegebene empirische $T^{3/2}$ -Relation beschrieben (Gleichung 7.6).

Diskrepanzen treten bei einigen γ - γ -Winkelkorrelationsmessungen auf. Deutliche Abweichungen von der $T^{1,5}$ -Relation werden für $^{111}\text{CdZn}$ ⁸⁰⁾, $^{117}\text{InCd}$ ⁷⁹⁾, $^{117}\text{InZn}$ ⁸¹⁾ und $^{117}\text{InSn}$ ⁸²⁾ für $T < 200$ K festgestellt. Anpassungen mit dem Exponenten aus Gleichung (7.6) als freiem Parameter zeigen außerhalb der Fehlergrenzen eine Abweichung vom Exponenten 1,5.

Die im Temperaturbereich $T < 200$ K festgestellten Abweichungen bei den Ionenstrahlexperimenten werden - wie in Abschnitt 6.3 erläutert - auf Strahlenschäden zurückgeführt. Deshalb wurden für diese Messungen die Temperaturpunkte mit Temperaturen $T < 200$ K bei den Anpassungen unberücksichtigt gelassen; dies trifft damit für die Messungen $^{67}\text{GeZn}$, $^{67}\text{GeCd}$ und $^{67}\text{GeSn}$ zu. Anpassungen mit dem Exponenten als freien Parameter sind wegen der nicht ausreichenden Genauigkeit dieser Daten wenig sinnvoll. Ergebnisse einer Anpassung an die Funktion (7.6) sind in Tabelle VII.2 wiedergegeben. Als Normierungspunkt wurde die Frequenz bei $T = 273$ K gewählt; wegen der Häufung der Meßwerte im Temperaturbereich um $T = 273$ K erwartet man für die Normierungstemperatur und damit auch für die normierten Steigungen den kleinsten Fehler⁸³⁾. Die Abb. 7.1 stellt eine Anpassung als Funktion von $T^{1,5}$ dar. Der Übersichtlichkeit halber wurde eine Darstellung, die auf $T = 0$ K normiert ist, gewählt.

Tab. VII.2:

Betrag der Stärke der Temperaturabhängigkeit $|m| \times 10^5$ [$K^{1,5}$] der normierten Frequenzen $\nu_Q(T)/\nu_Q(T=273K)$ für s-p-Metalle (Anpassung gemäß Gleichung (7.6)).

$\uparrow$ Sonda $\rightarrow$ Wirtsgitter	Zn	Cd	In	Sn
^{67}Zn	1,22(10) a)	2,09(96) b)	-	-
^{67}Ge	1,75(5) b)	2,39(15) b)	13,3 (25) b)	3,10(11) b)
^{111}Cd	0,96(10) c)	1,98(2) d)	8,52(22) e)	3,51(6) e)
$^{115,117}\text{In}$	1,14(8) f)	2,39(13) g)	9,39(1) h)	2,27(30) i)
$^{113,116}\text{Sn}$	-	2,02(12) k)	-	-
^{197}Hg	1,78(22) l)	3,2 (17) l)	-	-
Die Wechselwirkungsfrequenzen sind folgenden Referenzen entnommen:				
a) Ref. 2	b) diese Arbeit	c) Ref. 80	d) Ref. 71	
e) Ref. 11	f) Ref. 81	g) Ref. 79	h) Ref. 1	
i) Ref. 82	k) Ref. 84	l) Ref. 51		

Das zur Erklärung der $T^{3/2}$ -Relation von Heubes und Mitarbeitern angegebene Modell bleibt hypothetisch, solange nicht die in Abschnitt 7.1 angeführten Einschränkungen aufgehoben sind. Der augenblickliche Stand des Modells bietet keinen weiteren Ansatzpunkt für die Analyse der vorliegenden Daten. Deshalb wird im nächsten Abschnitt versucht, mit Hilfe des von Quitmann und Mitarbeitern⁷⁰⁾ vorgeschlagenen Modells die gemessenen Temperaturabhängigkeiten zu interpretieren.

Dieser Ansatz linearisiert offensichtlich die Temperaturabhängigkeiten schlechter als die empirische $T^{3/2}$ -Relation, jedoch zeigt ein ähnlicher Ansatz in einem kürzlich von P.Jena veröffentlichten Beitrag⁸⁵⁾, daß eine $T^{1,5}$ -Abhängigkeit auch mit solchen Modellen reproduziert werden kann. Weiterentwicklungen des hier verwendeten Modells weisen ähnliche Resultate auf⁷⁵⁾.

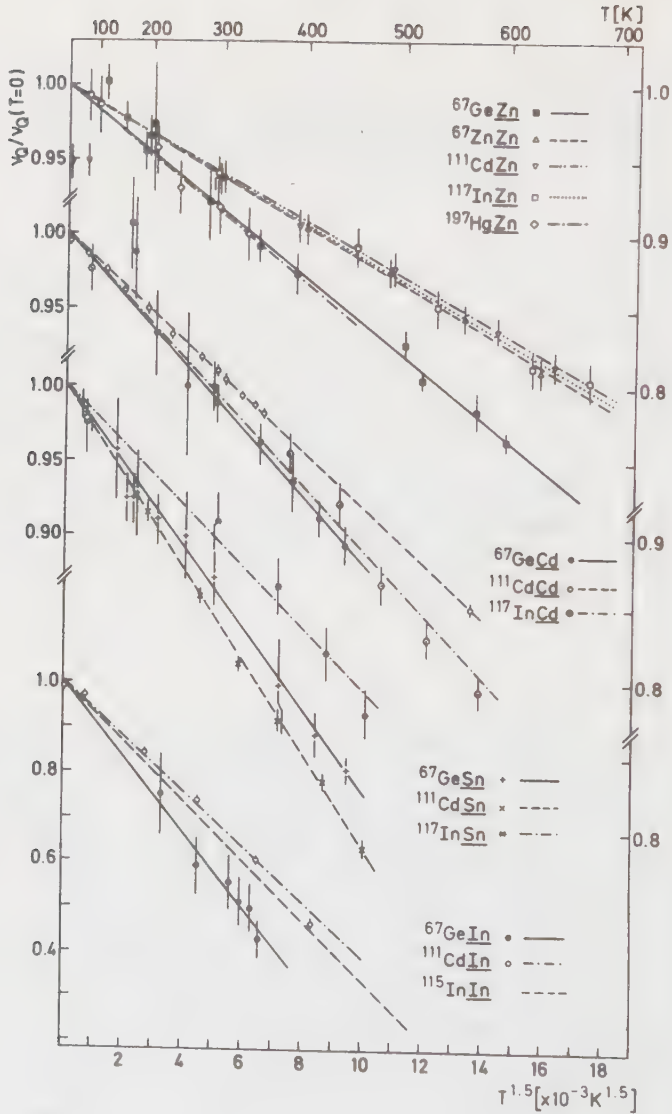


Abb. 7.1:

Temperaturabhängigkeit der normierten Kopplungskonstanten $v_Q/v_Q(T=0)$ aufgetragen über $T^{1.5}$.

7.3 Vergleich der Temperaturabhängigkeit des EFG in den Wirtsgittern Zn, Cd, In und Sn

Der Abb. 7.1 entnimmt man, daß für alle Sonden die Stärke der Temperaturabhängigkeit für die Wirtsgitter in der Reihenfolge Zn, Cd, Sn und In zunimmt. Wie in Abschnitt 7.1 festgestellt wurde, läßt sich dies nicht auf den ionischen Anteil zurückführen. Die unterschiedliche Stärke der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung muß also durch eine andere spezielle Eigenschaft der Matrizen hervorgerufen werden. Am klarsten sollte sich diese bei den "reinen" Systemen zeigen, da hier die zusätzlichen Einflüsse der Fremdatome nicht vorhanden sind.

Unter der Annahme, daß der Anteil q_0^* (Gleichung (7.5)) aus dem Ansatz von Quitmann und Mitarbeitern⁷⁰⁾ nur schwach von der Temperatur abhängig ist, ergibt sich für die normierten Frequenzen in der Hochtemperaturnäherung:

$$\frac{\nu_Q(r)}{\nu_Q(r_N)} = \frac{q(r)}{q_N} \approx \frac{\xi q_0^*}{q_N} + \frac{\xi q^*}{q_N} \cdot \frac{r}{r'} \cdot \frac{3\pi^2}{4\pi^2 \theta_D^2} \cdot T \quad (7.10)$$

$$\approx c_1 + c_2 \frac{1}{\theta_D^2} \cdot T = c_1 + m' T \quad (7.11)$$

Damit erhält man für die Stärke m' der Temperaturabhängigkeit und die Debyetemperatur θ_D folgende Proportionalität:

$$m' \sim \frac{1}{\theta_D^2} \quad (7.12)$$

wenn nur c_2 für die verschiedenen Systeme konstant bleibt.

Die Ergebnisse für die Stärke m' der Temperaturabhängigkeit bei einer Anpassung von Gleichung (7.11) an die Daten für $T > \theta_D$ ($T_N = 273$ K) sind in Tabelle VII.3 wiedergegeben. Für die Fremdatomsysteme wurde dabei $\gamma/\gamma' = 1$ gesetzt (s.o.). Die Proportionalität (7.12) bestätigt sich für die "reinen" Systeme, die Werte für Fremdatome als Sonde streuen darum.

Tab. VII.3:

Betrag der Steigung $|m| \times 10^{-3} [K^{-1}]$ der normierten Frequenzen $\nu_Q/\nu_{QN}(T=273K)$ für s-p-Metalle (Anpassung gemäß Gl. 7.11)

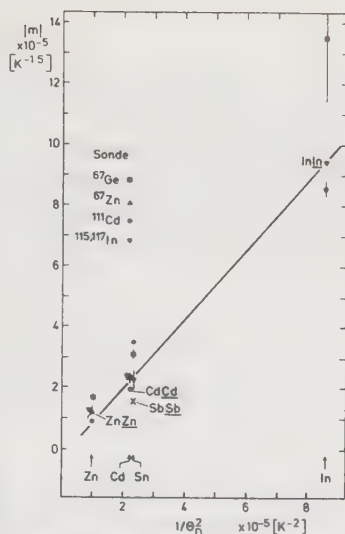
(Wegen der Referenzen für die Wechselwirkungsfrequenzen vergleiche man Tabelle VII.2)

+ Wirtsgitter + Sonde	Zn	Cd	In	Sn
Ge	0,54 (3)	0,66 (5)	3,48 (55)	0,86 (5)
In	0,40 (3)	0,78 (8)	2,43 (1)	0,82 (1)
Zn	0,39 (4)	-	-	-
Cd	0,38 (3)	0,61 (2)	2,63 (4)	0,94 (2)
$\Theta_D^* [K]$	327	209	108	200
$\frac{1}{\Theta_D^2} \times 10^{-5} [K^{-2}]$	0,94	2,29	8,57	2,50
* Ref. 86				

Die Diskussion weiter oben hat gezeigt, daß die in diesem Zusammenhang betrachteten experimentellen Ergebnisse über den gesamten Temperaturbereich besser durch die $T^{1,5}$ -Relation reproduziert werden und die lineare Abhängigkeit in T ($T > \Theta_D$) nur eine erste Näherung sein kann. Es steht zu erwarten, daß die Steigungen m aus der $T^{1,5}$ -Anpassung die Korrelation zu $1/\Theta_D^2$ ebenfalls zeigen. Abb. 7.2 bestätigt dies gut für die "reinen" Systeme und auch für die Frematomsysteme; die Werte sind der Tabelle VII.2 entnommen. Im folgenden werden stets die Werte aus der Anpassung gemäß Gleichung (7.6) verwendet. Nicht in der Tabelle VII.2 ist der Wert für $SbSb^{78)}$ enthalten, die Anpassung ergibt für $m = 1,36(3) \cdot 10^{-5} K^{-1,5}$, die Debyetemperatur ist Ref. 86 entnommen. Auch dieser Wert ist innerhalb der Fehler in Übereinstimmung mit der Relation Gleichung (7.12).

Abb. 7.2:

Die Stärke der Temperaturabhängigkeit der elektrischen Quadrupolwechselwirkung als Funktion von $1/\theta_D^2$.



Kritik an dieser Analyse ist angebracht, da das Debyemodell nur eine grobe Näherung für das Schwingungsspektrum des realen Kristalls ist. Weiterhin ist die Debyetemperatur, die hier zur Charakterisierung des Wirtsgitters herangezogen wird, für die meisten Materialien mit großen Fehlern behaftet. Die aus elastischen Daten (z.B. Messung der Schallgeschwindigkeit) und aus thermischen Eigenschaften (z.B. Messung der spezifischen Wärme) gewonnenen Debyetemperaturen für weißes Sn $\theta_D \approx 200$ K unterscheiden sich nicht unerheblich von den aus Mößbauerdaten gewonnenen Werten $\theta_D \approx 150$ K⁶⁰).

Weitere Probleme ergeben sich für die stark anisotropen Metalle Cd und Zn. Die Debyetemperaturen parallel und senkrecht zur sechszähligen Achse unterscheiden sich; die angegebenen mittleren Debyetemperaturen, die hier verwendet wurden, schwanken zwischen diesen Extremwerten (vergl. z.B. Ref. 60). Abweichungen von der empirischen Relation (7.12) sind daher durchaus zu erwarten.

Eine detaillierte theoretische Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung für die "reinen"

Systeme im Rahmen dieses Modells muß aber berücksichtigen, daß die genannte Anisotropie der Wirtsmatrizen und die Änderung der Debyetemperatur als Funktion der Temperatur sowie Anharmonizitäten für $T \gg \Theta_D$, das berechnete Schwingungsspektrum verändern. Gegebenenfalls können experimentelle Werte aus Röntgen- oder Neutronenstreudaten für das Schwingungsspektrum verwendet werden.

Wird zusätzlich auch die Hochtemperaturnäherung fallen gelassen, behält auch in diesem Modell die Temperaturabhängigkeit nicht mehr die einfache analytische Form aus Gleichung (7.5).

Das zur Zeit vorhandene experimentelle Material scheint - trotz der vereinfachenden Annahmen bei der Analyse und den oben genannten Unsicherheiten - die Proportionalität zwischen der Stärke des Temperaturganges und $1/\Theta_D^2$ zu bestätigen; deutliche Ausnahme ist $^{115}\text{TeSn}$, bei dem eine Steigung $|m| = 9,1 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1,5}$ beobachtet wird, die in der Größenordnung der In-Werte liegt.

Die gefundene Proportionalität ist ein Hinweis, daß die Änderung der Wechselwirkungsfrequenz als Funktion der Temperatur durch thermische Phononenanregung hervorgerufen wird.

7.4 Der Einfluß des Fremdatoms auf den Temperaturgang

Der Beitrag des Fremdatoms zur Stärke der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung ist im Vergleich zu der des "reinen" Systems bestimmt. Als Maß für die Abweichung soll das Verhältnis S der Steigung m_F des Temperaturganges des Fremdatoms F in der Matrix M zu der des Temperaturganges im "reinen" System m_M definiert werden:

$$S = m_F / m_M \quad (7.13)$$

In Tabelle VII.4 sind die Verhältnisse S für die Wirtsmatrizen Zn, Cd und In eingetragen, die mit Hilfe der Werte aus Tabelle VII.2 berechnet wurden. Für die Wirtsmatrix Sn ist dies nicht möglich, da die Messungen zur Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung des "reinen" Systems SnSn mit Hilfe des Mößbauereffektes am ^{119}Sn keine ausreichende Genauigkeit haben⁸⁷⁾.

Tab. VII.4:

Vergleich der relativen Stärke $S = m_F/m_X$ der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung für Fremdatome (F) in den Wirtsgittern (M) Zn, Cd, In

Wirtsgitter + Sonde	Zn	Cd	In
^{67}Zn	1	1,06 (48)	-
^{67}Ge	1,43 (4)	1,21 (3)	1,42 (27)
^{111}Cd	0,79 (8)	1	0,91 (2)
$^{115,117}\text{In}$	0,93 (7)	1,21 (7)	1
$^{113,116}\text{Sn}$	-	1,02 (6)	-
^{197}Hg	1,46 (8)	[1,62 (86)]	-

Tab. VII.5:

Chemische Wertigkeit, Poissonverhältnis σ und effektive Wertigkeitsdifferenz δZ . Zur Berechnung von δZ vgl. Gl. (2.22)

Wirtsgitter + Sonde	Zn	Cd	In
σ	0,25	0,28	0,45
δZ	2	2	?
^{67}Zn	2	0	0,4
^{67}Ge	4	1,45	1,95
^{111}Cd	2	- 0,5	0
$^{115,117}\text{In}$	3	0,2	0,75
$^{113,116}\text{Sn}$	4	1,14	1,7
^{197}Hg	2	- 0,7	- 0,15

* Werte für σ sind Ref. 88 entnommen.

Übernimmt man die Argumentation von Abschnitt 2.3, so sollten diese Unterschiede in der Temperaturabhängigkeit der verschiedenen Fremdatome in den jeweiligen Matrizen mit Hilfe des Modells der Ladungsabschirmung erklärbar sein. Nach diesem Modell sind die Änderungen des EFG direkt auf die Änderung der Zustandsdichte der Elektronen an der Fermikante zurückzuführen (Gl. (2.19)) und sollten eine Abhängigkeit von der effektiven Valenzdifferenz δZ zeigen. Tabelle VII.5 enthält die effektiven Valenzdifferenzen δZ , die sich aus den chemischen Valenzdifferenzen durch die Volumenkorrektur (Gl. (2.24)) ergeben. Die Poissonverhältnisse für die Matrizen und die verwendeten chemischen Wertigkeiten sind mit in die Tabelle aufgenommen.

Die Abb. 7.3 stellt das Verhältnis S als Funktion der effektiven Wertigkeitsdifferenz dar. Als Fehler sind nur die Fehler der Steigung des Fremdatomsystems angegeben, Fehler der Steigung der "reinen" Systeme ergeben nur eine Verschiebung entlang der Ordinatenachse und sind nicht von grundsätzlicher Bedeutung. Eine solche Verschiebung des Verhältnisses S zu kleineren Werten liegt für das Zn-Wirtsgitter vor.

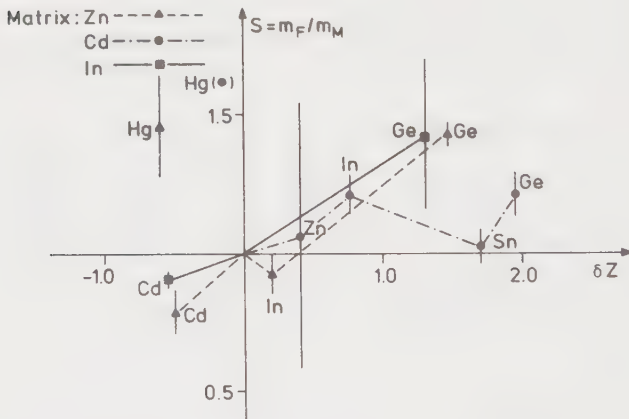


Abb. 7.3:

Relative Stärke der Temperaturabhängigkeit der normierten Quadrupolkopplungskonstanten als Funktion der effektiven Valenzdifferenz δZ .

Der Tabelle VII.2 kann man entnehmen, daß der Fehler der Steigung von $^{67}\text{ZnZn}$ für die "reinen" Systeme am größten ist. Ein kleinerer Wert für die Steigung von $^{67}\text{ZnZn}$ ist noch mit den Daten verträglich, kann also eine Verschiebung zu größeren Ordinatenwerten erwirken.

für den Bereich $\delta Z > 0$ beobachtet man eine Verstärkung der Temperaturabhängigkeit, während für $\delta Z < 0$ sich eine Abschwächung andeutet. Dieses Verhalten ist in Übereinstimmung mit dem Kurvenverlauf in Abb. 2.1 und stützt die Interpretation, dass der Anteil q (Gl. (7.5)) proportional der Elektronenzustandsdichte an der Fermikante ist.

Eine Ausnahme macht nur Hg als Sonde. Hier wird entsprechend dem Modell eine Abschwächung erwartet, jedoch wird eine Verstärkung vergleichbar mit der der Systeme $^{67}\text{GeZn}$ bzw. $^{67}\text{GeCd}$ gemessen. (Wegen des grossen Fehlers (doppelter Fehler von ZnCd) wurde der Wert von HgCd in Klammern und ohne Fehlerbalken in Abb. 7.3 eingetragen).

Neueste Messungen von Prince und Mitarbeitern⁸⁹⁾ ergeben bei den Systemen $^{197}\text{AuCu}$ und $^{197}\text{AuAg}$ für das Verhältnis der elastischen Konstanten $\gamma/\gamma' = 0,67$ bzw. $0,72$. Lässt man die Annahme $\gamma/\gamma' \approx 1$ - die bei der Analyse der Daten bisher gemacht wurde - fallen und überträgt die Verhältnisse auf die Systeme HgZn bzw. HgCd - es handelt sich dabei um den Übergang von den I-B-(fcc)- zu den II-B-Metallen (hcp) - so würde man nach Gleichung (7.11) eher eine kleinere Steigung erwarten. Ebenso sollte der Massenunterschied keinen Einfluss haben (vergl. Abschnitt 7.1)

Für die Messungen $^{197}\text{HgZn}$, $^{197}\text{HgCd}$ ist ausserdem zu berücksichtigen, dass nur wenige Messpunkte (5 bzw. 4) in einem Temperaturintervall von $\Delta T \approx 200$ K vorhanden sind und nur etwa $1/4$ der Wechselwirkungsperiode beobachtet wird; systematische Fehler sind daher nicht auszuschliessen (vergl. Ref.45). Das Gewicht dieser Messungen ist entsprechend klein anzusetzen.

Mit der Annahme $\gamma/\gamma' \neq 1$ liesse sich das veränderte Temperaturverhalten einer Fremdatomsonde in verschiedenen Matrizen im Vergleich zu den jeweiligen "reinen" Systemen auch auf eine Änderung des Verhältnisses der elastischen Konstanten zurückführen, die u.a. von dem lokalen Fremdatompotential hervorge-

rufen wird⁸⁹⁾. Eine Abhängigkeit von der Valenzdifferenz wäre auch in einem solchen Modell erklärbar.

Die Abb. 7.3 bestätigt grundsätzlich einen Einfluß des Fremdatoms auf die Stärke der Temperaturabhängigkeit des EFG für s-p-Metalle. Aus der Tabelle VII.4 ersieht man, daß nur in wenigen Fällen, z.B. $^{67}\text{GeZn}$, $^{67}\text{GeIn}$, $^{117}\text{InCd}$ auffallende Abweichungen von der Temperaturabhängigkeit der "reinen" Systeme auftreten. Um den "Fremdatomeffekt" bei der Temperaturabhängigkeit des EFG festzustellen, bedarf es daher genauer Analysen.

Mangels experimenteller Daten kann die Analyse bisher nur für die Wirtsgitter Zn, In und Cd erfolgen. Weiterhin wird die Aussage eingeschränkt, weil das vorliegende experimentelle Material nicht immer die notwendige Genauigkeit hat, die für die normierte Darstellung notwendig ist. Insbesondere ergeben sich durch die Abweichungen bei tiefen Temperaturen größere Fehler bei den Anpassungen, die die Analyse erschweren (z.B. CdZn). Der Vorteil, daß man durch die normierte Darstellung unabhängig vom absoluten Wert des Quadrupolmoments wird, wird dadurch teilweise wieder aufgehoben. Erst weitere, genauere Experimente können einen eindeutigen Aufschluß über eine solche Relation geben.

7.5 Zusammenfassung

Die Diskussion in den Abschnitten 7.3 und 7.4 zeigt, daß sich jeweils Teilaspekte der Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung durch die in Abschnitt 7.1 skizzierten theoretischen bzw. empirischen Ansätze beschreiben lassen. Die Analyse des bisher vorliegenden Materials führt zu folgenden Ergebnissen:

- a) Bis auf wenige Ausnahmen wird die Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung durch eine $T^{1,5}$ -Relation beschrieben¹¹⁾.
- b) Die Stärke $m = \left| \frac{1}{q_w} \frac{dq}{dT} \right|$ der Temperaturabhängigkeit für "reine" Systeme, d.h. CdCd usw., skaliert mit dem Quadrat der reziproken Debye-Temperaturen.
- c) Die unterschiedliche Stärke des Temperaturganges für Fremdatomsysteme im Vergleich zu dem der "reinen" Systeme hängt von der effektiven Wertigkeitsdifferenz δZ ab.

Der Einfluß auf den EFG, der durch die Änderung der Gitterkonstanten erfolgt, wurde bei der Diskussion bisher nicht berücksichtigt. Es ist jedoch zu beachten, setzt man Gleichung (2.19) für den "elektronischen" Anteil des EFG voraus, daß dieser Ausdruck explizit vom Gitteranteil des EFG und mithin auch von der Änderung der Gitterkonstanten abhängt. Zusätzlich - wie in Abschnitt 7.3 erwähnt - ist die genaue Struktur des Schwingungsspektrums zu berücksichtigen, wenn nicht wie bei der Auswertung der Gleichung (7.11) der Einfachheit halber die grobe Debye'sche Näherung verwendet wird. Insgesamt erhält man damit einen nicht mehr linearen Verlauf der Temperaturabhängigkeit des EFG. Nachträglich ergibt sich dadurch die Berechtigung, die Differentialquotienten der Anpassung an die Funktion Gleichung (7.6) in Abschnitt 7.4 zu benutzen, wenn nur die Überlagerung dieser verschiedenen Temperaturabhängigkeiten annähernd die $T^{1,5}$ -Relation reproduzieren.

Ein Ansatz, der die Meßergebnisse wiedergibt, könnte folgende Form haben:

$$q(T)/q_0 = 1 + c_3 \frac{1}{\Theta_D^2} q_0 \cdot T^{1,5}$$

wobei q_e den Beitrag zum EFG angibt, der durch die Änderung vom Fremdatom hervorgerufene Zustandsdichteverteilung der Elektronen hervorgerufen wird. q_0^* ist dabei der EFG bei $T = 0 \text{ K}$.

8. Die Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie

Die durch die Rückstoßatome selbst hervorgerufenen Strahlenschäden (z.B. Zwischengitteratome, Leerstellen) führen zu Ladungs- und Symmetriestörungen des Wirtsgitters und verursachen i.a. in nichtkubischen Metallen einen gegenüber dem gittertypischen veränderten EFG, bzw. in kubischen Metallen sind diese Störungen Ursache des EFG.

Bei einem überwiegenden Teil der Ionenstrahlexperimente wird eine starke Abnahme der Anisotropie bei Temperaturen um $0,6 - 0,75 \cdot T_M$ (T_M = Schmelzpunkt der Matrix) beobachtet; es gibt aber auch Fälle, wie etwa bei den Messungen zur magnetischen Hyperfeinwechselwirkung von ^{66}Cu ($\tau = 860 \text{ ns}$, $I = 6$)⁹⁰⁾ und ^{67}Zn ($\tau = 480 \text{ ns}$, $I = 9/2$)⁹¹⁾ in einer Kupfermatrix, bei denen über einen weiten Temperaturbereich von 100 K - 1000 K weder eine signifikante Abnahme der Anfangsanisotropie noch eine Dämpfung der Modulationsamplitude festgestellt wird.

Eine einheitliche Erklärung für diese Effekte gibt es augenblicklich nicht. Systematische Trends wie Korrelation zum Valenzunterschied⁹¹⁾, Bindungseffekte⁶⁹⁾, unterschiedliche Ionenradien etc. konnte bisher nicht eindeutig nachgewiesen werden. Es ist noch nicht geklärt, ob diese Anisotropieabnahme durch eine zeitabhängige oder statische elektrische Quadrupolwechselwirkung verursacht wird, oder aber eine Kombination beider Wechselwirkungstypen zur Interpretation herangezogen werden muss.

Die Schwierigkeiten, den durch die Strahlenschädigungen hervorgerufenen EFG zu beschreiben, liegen in der Unkenntnis der Umgebung des Sondenkerns und deren dynamischem Verhalten in Zeiten $t \ll 10 \text{ ns}$ (vergl. Abschnitt 8.2).

Bisher gibt es nur ein Experiment⁶⁷⁾, in dem die durch das Rückstoßatom erzeugten Fehlstellen (in diesem Fall Zwischen-

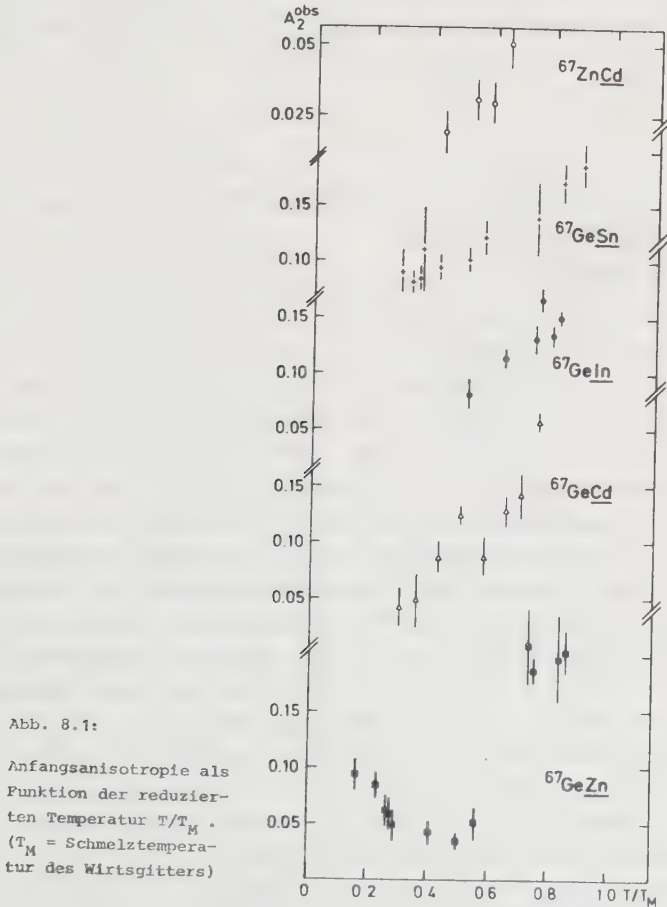
gitteratome) unmittelbar nach ihrer Erzeugung nachgewiesen werden konnten. Auskunft über die Gesamtheit der Schädigung des Gitters in der Umgebung des Sondenatoms können vorläufig nur die in Abschnitt 6.2 erwähnten Computersimulationsexperimente liefern⁶⁴⁾.

Auf dieses Simulationsexperiment soll daher in einigen Punkten eingegangen werden. Die Ergebnisse der Anpassungen werden in Abschnitt 8.1 beschrieben und in Abschnitt 8.3 mit vorhandenen Modellvorstellungen verglichen. PAC- und Mößbauer-Experimente in Verbindung mit Channelingexperimenten deuten darauf hin, daß nicht alle Rückstoßatome stets einen substitutionellen Platz einnehmen. Daraus ergeben sich Konsequenzen für die beobachtbare Anfangsanisotropie, die anhand der Ergebnisse dieser Arbeit und in der Literatur beschriebener Experimente diskutiert werden sollen (Abschnitt 8.4).

8.1 Ergebnisse der Anpassungen

Die experimentellen Ergebnisse für die Anfangsamplitude von ^{67}Ge in Zn, Cd, In und Sn und für $^{67}\text{ZnCd}$ sind in Abb. 8.1 zusammengefaßt, wobei eine normierte Auftragung über T/T_M gewählt wurde (T_M = Schmelzpunkt der Matrix). Die Werte der Anisotropie sind entsprechend auf die Pulsbreite aus Tabelle IV.1 korrigiert. Die in Abschnitt 6.3 diskutierten zusätzlichen Korrekturen, die durch Dämpfungen bei den Mehrschichttargets auftreten, konnten nicht berücksichtigt werden, da die Relaxationszeit nur für einen Temperaturpunkt bekannt ist; eine Temperaturabhängigkeit der Relaxation, wie sie bei Messungen zur magnetischen Hyperfeinwechselwirkung beobachtet wird, aber ebenfalls anzunehmen ist. Auf systematische Fehler, die z.B. durch Untergrundprobleme hervorgerufen werden können (vergl. Abschnitt 6.1.2) wurden ebenfalls nicht korrigiert.

Innerhalb der Fehler werden für die ^{67}Ge -Sonde in den verschiedenen Wirtsgittern für $T/T_M > 0,75$ gleiche Anfangsanisotropien von 17% - 20% festgestellt. Ebenso tritt der Abfall der Anisotropie etwa im gleichen Temperaturbereich von $0,6 \leq T/T_M \leq 0,75$ auf. Signifikante Unterschiede werden für Temperaturen $T/T_M < 0,3$ gemessen. Der Vergleich der Werte von $^{67}\text{GeCd}$ und $^{67}\text{GeSn}$



zeigt deutlich eine um den Faktor 2 unterschiedliche Restamplitude in diesem Temperaturbereich. Eine Ausnahme bildet $^{67}\text{GeZn}$, hier wird ein Minimum der beobachteten Anisotropie bei $T/T_M \approx 0,5$ festgestellt. Der mit kleineren Temperaturen wieder erfolgende Anstieg erreicht ein Niveau von ca. 50% des Maximalwertes -vergleichbar dem von $^{67}\text{GeSn}$. Ein Anstieg der Anisotropie zu kleineren Temperaturen bei Ionenstrahlexperimenten wurde bisher nur bei der Beobachtung der Larmorfrequenz in Ag-Au-Legierungen festgestellt⁹²⁾.

8.2 Das Zeitverhalten der Umgebung des Sondenatoms nach dem Abbremsprozeß

Die Messungen von ^{67}Ge in den Matrizen Zn, Cd, In und Sn zeigen, daß die Abnahme der Anisotropie in Zeiten $t < 50$ ns erfolgt. Kürzlich durchgeführte Experimente zur Bestimmung der magnetischen Hyperfeinwechselwirkung des $9/2^+$ -Zustandes in ^{71}As ($\tau \approx 29$ ns) lassen darauf schließen, daß die Abnahme sogar in Zeiten $t < 10$ ns erfolgen muß⁹³⁾. Nach den Computersimulationsexperimenten von Doran⁶⁴⁾ für α -Eisen muß man davon ausgehen, daß sich die Defektkonfigurationen innerhalb der Verlagerungskaskade während der hier interessierenden Zeiten $t \approx \mu\text{s}$ drastisch ändern. In welcher Art sich diese Defektkonfigurationen ändern, stellen exemplarisch die Abb. 8.2a,b für die Bildung von Zwischengitter- und Leerstellencluster für eine 20 keV-Verlagerungskaskade dar. Die Zeiträume zwischen "preanneal" und "postanneal" werden mit $t \approx 10^{-6}$ s angegeben, die Temperatur entspricht 800 K. ("Preanneal" bezeichnet die durch das Rückstoßatom bei $T = 0$ K erzeugte Defektkonfigurationen; "postanneal" bezeichnet die Defektkonfigurationen nach dem Ausheilvorgang, der durch einen Monte-Carlo-Prozeß simuliert wird).

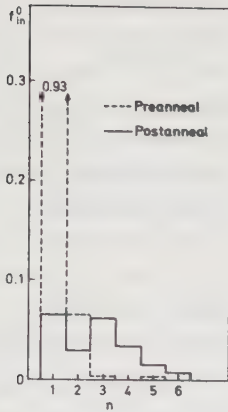
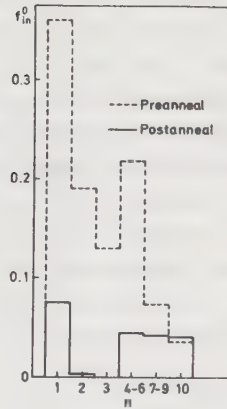


Abb. 8.2:

a) Anteil der Zwischengittercluster der Größe n erzeugt von einem Fe-Rückstoßatom von 20 keV in α -Eisen.

f_{in}^0 = Anfangszahl der Zwischengitteratome
- Hochtemperaturtemperatur (≈ 800 K) - (nach Ref. 64)



b) Anteil der Leerstellencluster der Größe n , erzeugt von einem Fe-Rückstoßatom von 20 keV in α -Eisen.

f_{in}^0 = Anfangszahl der Leerstellen
- Hochtemperaturtemperatur (≈ 800 K) - (nach Ref. 64)

Die Abb. 8.3 zeigt das zeitliche Ausheilverhalten für die durch ein 20 keV-Fe-Rückstomatom erzeugten Zwischengitteratome bei Temperaturen von $T = 300$ K und $T = 800$ K. Um den in dieser Abbildung verwendeten relativen Zeitmaßstab zu bestimmen, setzt man die Arrheniusgleichung für die Sprungfrequenz an:

$$\Omega = \Omega_0 \cdot \exp[-E_M/k_B \cdot T] \quad (8.1)$$

und schätzt Ω_0 nach der empirischen Gleichung

$$\Omega_0 = k_B \cdot \Theta_D / \hbar \quad (8.2)$$

ab (k_B = Boltzmannkonstante, E_M = Wanderungsenergie, Θ_D =

Debyetemperatur, h = Plancksches Wirkungsquantum), so erhält man für $T = 300$ K: $1/\Omega \approx 3 \cdot 10^{-10}$ s, bzw. $T = 800$ K: $1/\Omega \approx 2 \cdot 10^{-12}$ s ($\Theta_D = 467$ K; $E_M = 0,21$ eV⁶⁴) als Zeiten für einen Sprung der Zwischengitteratome. Man kann daher der Abb. 8.3 entnehmen, daß nach ca. 3 ns bei $T = 300$ K für α -Eisen eine nahezu konstante Konzentration von etwa 50% des Ausgangswertes für die Zwischengitteratome besteht, die über längere Zeiten erhalten bleibt. Wesentlich früher wird eine Restkonzentration von ca. 20% bei $T = 800$ K erreicht. Ganz analoge Verhältnisse erhält Doran für Leerstellen. Mit Hilfe der Gleichungen (8.1), (8.2) können die

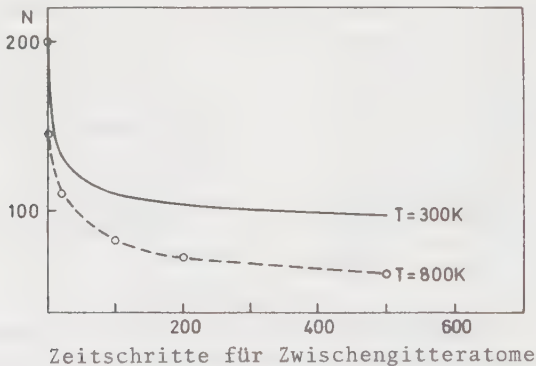


Abb. 8.3:

Ausheilverhalten von Zwischengitteratomen für
 $T = 300$ K — und $T = 800$ K --- in α -Eisen.
(Fe-Rückstoßatom von 20 keV) (nach Ref. 64)

entsprechenden Sprungzeiten für die Wirtsmatrix Sn grob abgeschätzt werden. Bei $T = 200$ K mit der angenommenen Wanderungsenergie von $E_M = 0,1$ eV und Θ_D aus Tab. VII.3 erhält man für die Zwischengitteratome $1/\Omega \approx 10^{-10}$ s und für die Leerstellen $1/\Omega > 1$ μ s bei $T < 300$ K (E_{M,D_0} aus Ref. 94), d.h. die Leerstellen können in dem von der Lebensdauer des isomeren Niveaus gegebenen Zeitmassstab als statisch angesehen werden.

Wegen der Unterschiede in der Gitterstruktur von α -Eisen (bcc) und den Gitterstrukturen von Cd, Zn, In und Sn können allerdings die Ergebnisse nur mit Einschränkungen auf die vorliegenden Experimente übertragen werden. Prinzipiell sollte man aber auch für diese Wirtsgitter annehmen können, daß die wesentlichen Ausheilprozesse sich in Zeiten $t < 2 \cdot 10^{-13}$ ns abspielen.

8.3 Vergleich der Ergebnisse mit Modellvorstellungen

Charakteristisch für die hier vorgestellten Meßergebnisse ist die Restanisotropie bei Temperaturen $T < 200$ K, die für alle in dieser Arbeit untersuchten Systeme zu beobachten ist. Ähnliches gilt für die anderen Messungen zur Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie der Quadrupolwechselwirkung, die mit der DPAD-Methode durchgeführt wurden. Für $^{111}\text{CdCd}^{4)}$ und $^{67}\text{ZnZn}^{69)}$ wird sogar über den gesamten Temperaturbereich eine nahezu konstante Anisotropie festgestellt.

Bei den Messungen zur magnetischen Hyperfeinwechselwirkung wird jedoch in einigen Fällen, z.B. $^{109}\text{CdAg}^{92)}$, ein völliger Verlust der Anfangsanisotropie bei Temperaturen $T < 400$ K gemessen, bei anderen Messungen wieder bleibt die Anfangsamplitude über den gesamten Temperaturbereich konstant (z.B. $^{67}\text{ZnCu}^{91)}$ und $^{66}\text{CuCu}^{90)}$) oder zeigt eine Restanisotropie wie bei $^{69}\text{GeCu}^{91)}$.

Ein einfaches dynamisches Modell - entsprechend dem Ansatz von Abragam und Pound⁴⁰⁾ für den Grenzfall schnell fluktuierender Wechselwirkungen (Gl. (3.14)) - in Verbindung mit der Bedingung, daß die Störung des Alignments in Zeiten $t < 10$ ns erfolgen muß, könnte nur eine völlige Abnahme der Anisotropie erklären (vergl. dazu Abschnitt 3.2), vorausgesetzt, es wird nicht angenommen, daß nur ein Teil der Son-

denkerne von dieser Wechselwirkung beeinflusst wird. Ob für den gesamten Temperaturbereich die Bedingung Gl. (3.14c) erfüllt wird, die notwendige Voraussetzung für die Anwendung des genannten Ansatzes ist, kann nicht genau genug abgeschätzt werden, da keine zuverlässigen Diffusionsdaten für die genannten Systeme bekannt sind. Es ist aber wenig wahrscheinlich, daß τ_c über den gesamten Temperaturbereich näherungsweise konstant bleibt und die Bedingung Gl. (3.14c) erfüllt; man muß annehmen, daß τ_c variiert und im Grenzfall kleiner Temperaturen ($T < 200$ K) $\tau_c \gg \langle \omega^2 \rangle^{-1/2}$ wird, d.h. der statische Fall eintritt. Die beobachtete Gaußverteilung und die Abweichungen der Frequenz für $^{67}\text{GeZn}$ ($T < 200$ K) sprechen für diese Annahme (vergl. Abschnitt 6.3).

Einem Ansatz von Bosch und Spehl⁹⁵⁾ folgend, der für beliebige Korrelationszeiten und für fluktuierende Feldgradienten beliebiger Richtung und Größe gilt, und den Abragam-Pound-Ansatz als Grenzfall beinhaltet, versuchen Hempel und Mitarbeiter⁶⁹⁾, die von $^{69}\text{GeZn}$ gemessene Anisotropieabhängigkeit zu erklären. Wesentliche Annahme ist eine Bindung zwischen der Fehlstelle - von den Autoren als Leerstelle angenommen - und dem Sondenatom. Die Fehlstelle führt um das Sondenatom thermisch aktivierte Sprünge mit der Zeitkonstanten τ_c aus und verläßt nach einer durch Bindungs- und Wanderungsenergie bestimmten Zeit τ_m die Region um das Sondengebiet, d.h. die Lebensdauer des isomeren Niveaus im Formalismus von Bosch und Spehl wird durch die Lebensdauer der Konfiguration Sondenatom-Leerstelle ersetzt. Da zusätzlich diese Lebensdauer klein gegen die Periode der Quadrupolwechselwirkung ist, braucht nur der zeitintegrale Einfluß dieser Störung berücksichtigt zu werden.

Sowohl Wechselwirkungsfrequenz als auch Sprungfrequenz können nicht dem Experiment entnommen werden. Um eine Anpassung nach dem Ansatz zu ermöglichen, müssen Annahmen über die Wechselwirkungsfrequenz und die Sprungfrequenz gemacht werden. Das Ergebnis ist in Abb. 8.4 als Kurve eingetragen.

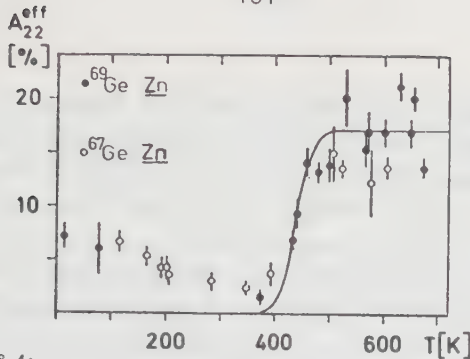


Abb. 8.4:

Anisotropieverhalten für $^{67}\text{GeZn}$ und $^{69}\text{GeZn}$ (nach Ref. 69)

Es gelingt mit diesem Ansatz offensichtlich nicht, die Restanisotropie bei Temperaturen $T \leq 400$ K zu beschreiben, wie sie für alle in dieser Arbeit gemessenen Fälle beobachtet wird.

Schatz und Mitarbeiter⁹¹⁾ nehmen an, daß nur ein Bruchteil f der Sondenkerne eine gestörte Umgebung "sieht", also eine Fehlstelle in nächster Nachbarposition hat. Nach einer durch die thermische Aktivierung und Bindungsenergie bestimmten Zeit verlassen die Fehlstellen die Region um das Sondenatom. Damit kann für den gestörten Teil f der Sondenatome ebenfalls ein zeitintegraler Störfaktor angesetzt werden, wobei die Lebensdauer des Niveaus wiederum durch die Lebensdauer der Defektconfiguration ersetzt wird, jedoch wird im Gegensatz zu Hempel und Mitarbeitern⁶⁹⁾ eine quasistatische Wechselwirkung vorausgesetzt. Die Autoren führen die unterschiedliche Anisotropieabnahme - für $^{67}\text{GeCu}$ wird eine Reduktion um 50% beobachtet, während für $^{67}\text{ZnCu}$ die Anisotropie über den gesamten Bereich konstant bleibt - auf verschiedene Bindungsenergien zwischen Fehlstelle und Sondenatom zurück. Es wird angenommen, daß die unterschiedlichen Bindungsenergien und damit auch die Alignmentabnahme mit der Valenzdifferenz korreliert sind.

Die Abhängigkeit von der Valenzdifferenz wird durch die Experimente dieser Arbeit nicht bestätigt - auch dann nicht, wenn die Volumenkorrektur nach Gl. (2.24), d.h. die effektive Valenzdifferenz berücksichtigt wird. Für $^{67}\text{GeZn}$ ($\delta Z = 1,45$) und $^{67}\text{GeCd}$ ($\delta Z = 1,95$) unterscheidet sich die Restanisotropie bei Temperaturen $T < 0,3 T_M$ fast um den Faktor 2, während diese für $^{67}\text{GeSn}$ ($\delta Z = 0,45$) und $^{67}\text{GeZn}$ in diesem Temperaturbereich nahezu gleich sind. Unverträglich erscheint diese Modellvorstellung für die magnetischen Messungen am System $^{109}\text{CdAg}$ ⁹²⁾, das dem System $^{67}\text{ZnCu}$ völlig analog ist. Für Temperaturen $T < 400 \text{ K}$ wird bei CdAg keine Anisotropie mehr beobachtet, während diese für ZnCu - wie bereits erwähnt - im ganzen Temperaturbereich konstant bleibt.

8.4 Diskussion der gemessenen Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie

Die Annahme, daß alle Rückstoßatome stets einen substitutionellen Gitterplatz einnehmen, die bei allen bisherigen Modellen benutzt wird, muß durch neuere Messungen zur Hyperfeinwechselwirkung in Verbindung mit Channelingexperimenten in Zweifel gezogen werden.

Kaufmann und Mitarbeiter¹²⁾ messen für $^{111}\text{CdBe}$ bei Verwendung verschiedener Mutterisotope mit der PAC-Methode um den Faktor 3 verschiedene Wechselwirkungsfrequenzen. Nachfolgende Channeling-Experimente bei Raumtemperatur der ungetemperten Proben zeigen für das Mutterisotop ^{111}In einen tetrahedralen Platz, ^{111}Ag bevorzugt einen substitutionellen Gitterplatz. Während nahezu alle ^{111}Ag auf einem substitutionellen Gitterplatz enden, werden für ^{111}In nur etwa 50% auf dem tetrahedralen Zwischengitterplatz festgestellt, die restlichen Atome nehmen andere Defektplätze ein. Diese Beobachtung

ist konsistent mit der im PAC-Experiment um den Faktor 2 reduzierten Anisotropie. Ähnliche Ergebnisse erhalten die gleichen Autoren für $^{111}\text{CdZn}^{80)}$, es wird ein Anteil $f < 13\%$ auf substitutionellen Gitterplätzen festgestellt.

Die Implantationsenergien bei den Experimenten mit dem Ionenseparator sind i.a. ≤ 100 keV, damit sind die Eindringtiefen auf wenige $100 \text{ \AA}$ begrenzt. Verunreinigungen der Oberfläche (Oxydation) können Einfluß auf die Meßergebnisse haben, wie es z.B. für $^{151}\text{EuFe}$ beobachtet wurde⁹⁶⁾.

Die Messungen von $^{111}\text{CdNi}^{97)}$ wurden jedoch bei vergleichbaren Rückstoßenergien wie in dieser Arbeit durchgeführt; die Eindringtiefen sind $\geq 1000 \text{ \AA}$, daher sollten Oberflächeneffekte vernachlässigbar sein. Andreeff und Mitarbeiter⁹⁷⁾ beobachten für dieses System 4 verschiedene Komponenten der magnetischen Hyperfeinwechselwirkung. Der Anteil, der dem substitutionellen Gitterplatz zugeordnet wird, nimmt mit steigender Ausheiztemperatur zu.

Die Ergebnisse der Mößbauerexperimente für die Hochfeldkomponente, gemessen an $5(s,p)$ -Metallsonden implantiert in Eisen, und der Anteil der Sondenatome auf substitutionellen Gitterplätzen, gemessen mit Channeling, sind in guter Übereinstimmung und reichen von $\approx 40\%$ bis $> 95\%$ ⁹⁶⁾

Die aufgeführten Experimente bestätigen, daß ein Teil der Sondenatome nicht auf substitutionellen Gitterplätzen zur Ruhe kommt und auch für makroskopische Zeiten diesen Platz beibehält. Dieser Anteil ändert sich mit der Temperatur.

Die Konstanz der Zwischengitteratomkonzentration für Zeiten $t > 3 \text{ ns}$, wie man sie aus den Rechnungen von Doran erhält, ließe es zu, diese Defektplätze u.U. mit Zwischengitterplätzen zu identifizieren. Nur unter der Voraussetzung einer statischen Wechselwirkung würde man erwarten, daß eine Wechselwirkungsfrequenz für diese speziellen Defektplätze meßbar sein müßte.

Das Ende einer Stoßkaskade bei DPAD-Messungen, d.h. wenn das Rückstoßatom auf Energien um 100 - 50 keV abgebremst ist, sollte direkt mit den Implantationsexperimenten vergleichbar sein. Es ist nicht anzunehmen, daß sich die Verlagerungskaskaden des Rückstoßatoms in diesem Bereich von dem eines implantierten Sondenatoms wesentlich unterscheidet. - Oberflächeneffekte ebenso wie die eventuell durch den Primärstrahl hervorgerufene Schädigung bleiben unberücksichtigt.

In Analogie zu den oben diskutierten Implantationsexperimenten kommt man für die DPAD-Messungen zu folgendem Bild, mit dem sich die beobachtete Anisotropieabhängigkeit der ^{67}Ge -Sonde in den s-p-Metallen beschreiben läßt: Man kann folgern, daß auch bei den Ionenstrahlexperimenten nur ein Teil f der Rückstoßatome auf einen substitutionellen Gitterplatz zur Ruhe kommt, die restlichen Sondenatome nehmen Defektplätze ein, deren Wechselwirkungsfrequenzen nicht aufgelöst werden können, und/oder deren Umgebung stark gestört ist - wobei sowohl eine statische als auch eine dynamische Störwechselwirkung in Frage kommt. Es ist nicht ausgeschlossen, dass die auf einem substitutionellen Gitterplatz befindlichen Sondenatome ebenfalls eine Störung erfahren, die sich in einer Dämpfung oder Frequenzverteilung der beobachteten scharfen Wechselwirkungsfrequenz äußern kann. Die Änderung der Anfangsanisotropie ist in einem solchen Modell in erster Näherung auf die Änderung des Anteils f zurückzuführen. Diese Änderung wird bestimmt durch das Ausheilverhalten der von dem Anteil 1-f der Sondenatome besetzten Defektplätze bzw. vom Ausheilverhalten der Umgebung derselben.

In einem Quadrupolexperiment sollte damit direkt der Anteil f der Sondenatome auf einem substitutionellen Gitterplatz bestimmt werden können: Sofern die maximale Anisotropie für eine spezielle Reaktion und einen Übergang bekannt ist - diese kann mit einer Messung im flüssigen Target gemessen werden - gibt die Restanisotropie bei tiefen Temperaturen den Anteil f der Sondenkerne auf einem substitutionellen Gitterplatz wieder. Der Abb. 8.1 entnimmt man, daß dieser Anteil sich für $^{67}\text{Ge}\underline{\text{Sn}}$ und $^{67}\text{Ge}\underline{\text{Cd}}$ um den Faktor 2 unterscheidet.

Wesentlich größere Anteile f würde man für die reinen Systeme erwarten, da hier Wirtsgitteratome und Sondenatome identisch sind und sicherlich ein substitutioneller Platz für den größten Teil der Rückstoßatome bevorzugt wird. Die beiden bisher vorliegenden Meßreihen für $^{111}\text{Cd}\underline{\text{Cd}}$ ⁴⁾ und $^{67}\text{Zn}\underline{\text{Zn}}$ ⁶⁹⁾ scheinen dies zu bestätigen. Die starke Frequenzverbreiterung, die bei beiden Experimenten für tiefe Temperaturen beobachtet wird, macht eine Auswertung der Anfangsanisotropie schwierig; die Aussagekraft der Experimente in dieser Hinsicht ist daher entsprechend reduziert.

Das Minimum der Anfangsanisotropie im Temperaturbereich $0,3 < T/T_M \leq 0,5$ für das System $^{67}\text{Ge}\underline{\text{Zn}}$ kann in einem solchen Bild nur unter der Annahme einer zusätzlichen Störung (z.B. Einfangen von Zwischengitteratomen der Sondenkerne) erklärt werden. Diese Annahme wird unterstützt durch Messungen der freien Zwischengitterdiffusion in Zn. Im Vergleich zu anderen Metallen wird eine erhöhte Defektproduktion und ein verändertes Diffusionsverhalten festgestellt⁹⁸⁾.

Die Interpretation der Experimente zur magnetischen Hyperfeinwechselwirkung kann in gleicher Weise erfolgen. So würde man aus dem Experiment von Schatz und Mitarbeitern⁹¹⁾ entnehmen, daß ^{69}Ge in Cu bei tiefen Temperaturen zu 50% Defektplätze besetzt, während ^{67}Zn über den gesamten Temperaturbe-

reich einen einheitlichen ungestörten Platz einnimmt. Die magnetischen Messungen gestatten jedoch nicht, zweifelsfrei den Anteil der Sondenatome auf einem Defektplatz abzuschätzen; ist das Quadrupolmoment verschwindend gering, so erwartet man über den gesamten Temperaturbereich eine nahezu konstante Amplitude, ganz gleich, welchen Platz das Sondenatom einnimmt. Für $^{66}\text{CuCu}^{90)}$ liegt ein solcher Fall vor, zum einen sind hier Sondenatom und Wirtsgitteratom identisch, zum anderen ist zu vermuten, daß das Quadrupolmoment dieses 6^- -Zustandes relativ klein sein sollte, wie aus den Experimenten mit Cu-Zn-Legierungen zu schließen ist³¹⁾.

Erste Auswertungen magnetischer Messungen von ^{111}Cd in kubischem Palladium zeigen über einen Temperaturbereich von $T = 300\text{--}1000\text{ K}$ keine nennenswerte Abnahme der Anisotropie⁹⁹⁾. Man kann daher auf einen Gitterplatz mit kubischer Symmetrie für ^{111}Cd in Pd schließen, der zu einem hohen Prozentsatz besetzt wird. Dies ist verträglich mit den Messungen zur Quadrupolwechselwirkung von ^{111}Cd in Pd⁶⁷⁾. In diesem Experiment wird nur bei einem Bruchteil $f = 0,04$ der Sondenkerne eine einheitliche Wechselwirkungsfrequenz bei Temperaturen $T < 410\text{ K}$ gemessen. Als Ursache des EFG werden durch das Cd-Sondenatom eingefangene Zwischengitteratome genannt. Die breite Frequenzverteilung, die von allen übrigen Sondenatomen wahrgenommen wird, sollte sich bei den Messungen zur magnetischen Hyperfeinwechselwirkung als Dämpfung der Spinrotationsspektren bemerkbar machen.

Die oben angeführte Vorstellung verlangt, daß für eine spezielle Wahl von Sonderelement und Wirtsgitterelement der Anteil f auf einheitlichen Gitterplätzen stets gleich sein sollte, d.h. man sollte für verschiedene isomere Niveaus der Isotope, die unterschiedliche Spin- und ein anderes Quadru-

polmoment haben, eine einheitliche Restanisotropie erwarten, falls nicht durch den speziellen Wechselwirkungscharakter der Störung - z.B. bei der statischen Wechselwirkung mit einer Frequenzverteilung wird i.a. ein "hard-core"-Wert beobachtet - zusätzliche Effekte auftreten. Bisher gibt es nur wenige Experimente dieser Art. Der Vergleich der Anisotropieabnahme bei den Messungen zur Qudrupolwechselwirkung von $^{67}\text{GeZn}$ und $^{69}\text{GeZn}$ ⁶⁹⁾ und die magnetischen Messungen von $^{67}\text{GeCu}$ und $^{69}\text{GeCu}$ ⁹¹⁾ zeigen innerhalb der Fehler Übereinstimmung; bei Annahme einer statischen bzw. dynamischen Störwechselwirkung als Ursache für die Anisotropieabnahme erwartet man ein Verhältnis von 1,2 bzw. 1,5, entsprechend dem einfachen Verhältnis bzw. dem Verhältnis der Quadrate der Qudrupolmomente.

Bei den Messungen zur Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie von ^{113}Sn und ^{116}Sn scheinen sich Unterschiede anzudeuten⁶²⁾. Für ^{116}Sn wird ein flacherer Verlauf der Temperaturabhängigkeit und eine größere Restanisotropie bei Temperaturen $T < 350$ K beobachtet. Jedoch sind die Spektren wegen vorhandener Abweichungen von der polykristallinen Struktur nur schwer auszuwerten; ebenso sind mögliche Dämpfungen den Spektren nicht zu entnehmen. Die Schwierigkeiten bei der Auswertung der Modulationsspektren lassen endgültige Schlüsse noch nicht zu. Abweichungen scheinen auch für ^{71}As in Ge aufzutreten⁷⁶⁾. Jedoch ist die Aussagekraft dieser Experimente wegen der nicht mehr eindeutig metallischen Natur von Sonde und Wirtsgitter eingeschränkt.

Die Diskussion zeigt, daß es bisher kein konsistentes Bild zur Beschreibung der Anisotropieabhängigkeit als Funktion der Temperatur gibt. Nur weitere Experimente können Aufschluß über die Richtigkeit der verschiedenen Lösungsansätze geben. Dabei ist einmal die Frage zu klären, ob ein temperaturabhän-

giger Anteil der Rückstoßatome Defektplätze einnimmt, bzw. gestört oder die Gesamtheit der Rückstoßatome durch eine quadrupolare Störung, die temperaturabhängig ist, beeinflusst wird, zum anderen muß der Typ der Störung - ob statisch oder dynamisch - geklärt werden. Simultane Messungen der Anisotropie als Funktion der Temperatur für die Zustände $^{67,69,71}\text{Ge}(Q_{(^{67}\text{Ge})}:Q_{(^{69}\text{Ge})}:Q_{(^{71}\text{Ge})}) = 1,22:1:0,219$ in einer Cu-Matrix und einer Zn-Matrix könnten Aufschluß über die oben angeführten Fragen geben. Um systematische Fehler zu vermeiden, müßten die Messungen zur Quadrupolwechselwirkung an Zn-Einkristallen vorgenommen werden. Sollte eine unterschiedliche Abhängigkeit der Anisotropie für die verschiedenen isomeren Zustände meßbar sein, so sind die Modellvorstellungen, die annehmen, daß nur ein Anteil der Atome beeinflusst wird, nicht haltbar, quadratische bzw. lineare Abhängigkeit der Effekte sollte dann die Unterscheidung zwischen zeitabhängiger und statischer Wechselwirkung ermöglichen.

- 1 R.R. Hewitt, T.T. Taylor, Phys. Rev. 125 (1962) 524
- 2 H. Bertschat, E. Recknagel, B. Spellmeyer, Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 18
- 3 R.S. Raghavan, P. Raghavan, Phys. Lett. 36A (1971) 313
- 4 J. Bleck, R. Butt, H. Haas, W. Ribbe, W. Zeitz, Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 1371
- 5 P. Raghavan, R.S. Raghavan, E.N. Kaufmann, Phys. Lett. 48A (1974) 131
- 6 F.C. Thatcher, R.R. Hewitt, Phys. Rev. B1 (1970) 454
- 7 D.L. Uhrich, R.G. Barnes, Phys. Rev. 164 (1967) 428
- 8 C. Janot, P. Delcroix, Phil. Mag. 30 (1974) 651
C. Janot, P. Delcroix, M. Piecuch, Phys. Rev. B10 (1974) 2661
- 9 E.N. Kaufmann, P. Raghavan, R.S. Raghavan, K. Krien, R.A. Naumann, phys. stat. sol. (b)63 (1974) 719
- 10 W. Bartsch, W. Leitz, W. Semmler, R. Sielemann, Th. Wichert, Phys. Lett. 54A (1975) 66
HMI-Jahresbericht 1973, B-144
- 11 P. Heubes, G. Hempel, H. Ingwersen, R. Keitel, W. Klinger, W. Loeffler, W. Witthuhn, in: Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Hrsg.: E. Karlsson, R. Wäppling, Almquist & Wiksell International, Stockholm 1974, Contributed Papers S. 208
- 12 E.N. Kaufmann, P. Raghavan, R.S. Raghavan, E.J. Ansaldo, R.A. Naumann, Phys. Rev. Lett. 34 (1975) 1558
- 13 E. Matthias, W. Schneider, R.M. Steffen, Phys. Rev. 125 (1962) 261
- 14 J. Pelzl, Z. f. Phys. 251 (1972) 13

- 15 K.W. Lodge, C.A. Sholl, J. Phys. F: Metal Phys. 4
(1974) 2073
- 16 F.W. de Wette, Phys. Rev. 123 (1961) 103
- 17 F.W. de Wette, G.E. Schacher, Phys. Rev. 137 (1965)
A78, A92
- 18 T.P. Das, M. Pomerantz, Phys. Rev. 123 (1961) 2070
- 19 R.E. Watson, A.C. Gossard, Y. Yafet, Phys. Rev. 140
(1965) A375
- 20 T.P. Das, in: Hyperfine Interactions Studied in Nuclear
Reactions and Decay , Hrsg.: E. Karlsson, R. Wäppling,
Almqvist & Wiksell International, Stockholm 1974,
Invited Paper
- 21 K.C. Das, D.K. Ray, Phys. Rev. 187 (1969) 777
- 22 E. Bodenstedt, U. Ortabasi, W.H. Ellis, Phys. Rev. B6
(1972) 2909
- 23 F.D. Feiock, W.R. Johnson, Phys. Rev. 187 (1969) 59
- 24 W. Kohn, S.H. Vosko, Phys. Rev. 119 (1960) 912
- 25 T.J. Rowland, Phys. Rev. 119 (1960) 900
- 26 G. Schnakenberg, R.T. Schumacher, Phys. Rev. B7 (1973)
2292
- 27 J. Friedel, Phil. Mag. 43 (1952) 153
- 28 N.F. Mott, Proc. Camb. phil. Soc. math. phys. Sci.
32 (1936) 281
- 29 C.P. Flynn, Point Defects and Diffusion, Clarendon Press,
Oxford 1972
- 30 J.A. Rigert, C.P. Flynn, Phys. Rev. Lett. 26 (1971) 1177
- 31 R. Sielemann, Dissertation, FU Berlin 1974
- 32 F.J. Blatt, Phys. Rev. 108 (1957) 285

- 33 D.E. Farell, J.H. Tripp, T.J. Harding, Phys. Rev. B1
(1970) 4533
- 34 K. Alder, Helv. Phys. Acta 25 (1952) 235
- 35 K. Alder, H. Albers-Schönberg, E. Heer, T.B. Novey,
Helv. Phys. Acta 26 (1953) 761
- 36 H. Frauenfelder, R.M. Steffen, in: Alpha-, Beta- and Gamma-
Ray Spectroscopy, Bd. II, Hrsg.: K. Siegbahn, North-Höl-
land Publishing Company, Amsterdam, 1965
- 37 T. Yamasaki, Nucl. Data A3 (1967) 1
- 38 H. Bertschat, U. Leithäuser, K.H. Maier, E. Recknagel,
B. Spellmeyer, Nucl. Phys. A215 (1973) 486
H. Bertschat, Dissertation, FU Berlin 1974
- 39 E. Matthias, W. Schneider, R.M. Steffen, Phys. Lett. 4
(1963) 41
- 40 A. Abragam, R.V. Pound, Phys. Rev. 92 (1953) 943
- 41 F.H. Ruddy, B.D. Pate, E.W. Vogt, Nucl. Phys. A127
(1969) 323
- 42 A. Nilsson, Z.P. Sawa, Phys. Scripta 9 (1974) 83
- 43 Z.P. Sawa, J. Sztarkier, Phys. Scripta 3 (1971) 243
- 44 W.D. Zeitz, Dissertation, FU Berlin 1974
- 45 Th. Wichert, Dissertation, FU Berlin 1975
- 46 R.S. Raghavan, P. Raghavan, J.M. Friedt, Phys. Rev. Lett.
30 (1973) 10
- 47 G.F. Koster, Phys. Rev. 86 (1952) 148
- 48 R.S. Raghavan, P. Raghavan, Phys. Rev. Lett. 28 (1972) 54
- 49 H. Bertschat, O. Echt, H. Haas, M. Ionescu-Bujor,
E. Ivanov, A. Jordachescu, G. Pascovici, D. Plostinaru,
E. Schlodder, B. Spellmeyer, S. Vajda,
HMI-Jahresbericht 1974, B-163

- 50 H. Haas , W. Leitz, H.-E. Mahnke, W. Semmler, R. Sielemann, Th. Wichert, Phys. Rev. Lett. 30 (1973) 656
- 51 K. Krien, J.C. Soares, K. Freitag, R. Vianden, A.G. Bibiloni, Hyperf. Int. 1 (1975) 217
- 52 J. Bleck, D.W. Haag, W. Leitz, R. Michaelsen, W. Ribbe, F. Sichelschmidt, Nucl. Phys. A123 (1969) 65
- 53 J. Bleck, Dissertation, FU Berlin 1970
- 54 E. Baltrusch, J. Bleck, S.S. Rosenblum, W.D. Zeitz, Nucl. Instr. Methods 114 (1974) 385
- 55 J. Christiansen, P. Hindennach, U. Morfeld, E. Recknagel, D. Riegel. G. Weyer, Nucl. Phys. A99 (1967) 345
- 56 E.N. Kaufmann, Nucl. Instr. Methods 103 (1972) 447
- 57 L.V. Azároff, Elements of X-Ray Crystallography, Mc Graw-Hill Book Company, New York 1968
- 58 J. Lindhard, V. Nielson, M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. 36 (1968) Nr. 10
- 59 J. Biersack, HMI-Bericht 1964, B-27
- 60 Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Zink, Bd. 32, Erg.Bd., Weinheim 1956
ibid. Kadmium, Bd. 33, Erg.Bd., Weinheim 1959
ibid. Zinn, Bd. 46 B , Weinheim 1971
- 61 S.L. Segel, R.D. Heyding, E.F.W. Seymour, Phys. Rev. Lett. 28 (1972) 970
- 62 O. Echt, H. Haas, E. Ivanov, M. Menningen, R. Rinneberg, HMI-Jahresbericht 1975, B-196
- 63 E. Ivanov, E. Recknagel, W. Semmler, E. Schlodder HMI-Jahresbericht 1974, B-163
- 64 D.G. Doran, rad. effects 2 (1970) 249

- 65 W. Hume-Rothery, R.E. Smallman, C.W. Haworth, The Structure of Metals and Alloys, Institute of Metals, London 1969
- 66 M. Hansen, Constitution of Binary Alloys, Mc Graw-Hill Book Company, New York 1958, und Erg.Bd. I und II
- 67 H. Bertschat, H. Haas, F. Pleiter, E. Recknagel, E. Schlodder, B. Spellmeyer, Phys. Rev. B12 (1975) 1
- 68 M. Behar, R.M. Steffen, Phys. Rev. C7 (1973) 788
- 69 G. Hempel, H. Ingwersen, W. Klinger, W. Loeffler, W. Sandner, W. Witthuhn, Phys. Lett 55A (1975) 51
- 70 D. Quitmann, K. Nishiyama, D. Riegel, 18th Ampère Congress, Nottingham 1974, Contributed Papers, S. 349
- 71 P. Heubes, Dissertation, Universität Erlangen-Nürnberg 1975
- 72 R.S. Raghavan, E.N. Kaufmann, P. Raghavan, Phys. Rev. Lett. 34 (1975) 1280
- 73 H. Bayer, Z. f. Physik 130 (1951) 227
T. Kushida, G.B. Benedek, N. Bloembergen, Phys. Rev. 104 (1956) 1364
- 74 B.E. Warren, X-Ray Diffraction, Addison-Wesley Publishing Company, Reading, Massachusetts, 1969
- 75 D. Riegel, private Mitteilung
- 76 W.M. Vischer, Phys. Rev. 129 (1963) 28
- 77 W.A. Steyert, R.D. Taylor, Phys. Rev. 134 (1964) A716
- 78 R.R. Hewitt, B.F. Williams, Phys. Rev. 129 (1963) 1188
- 79 R. Butt, H. Haas, S.S. Rosenblum, Phys. Rev. B9 (1974) 3705
- 80 P. Raghavan, R.S. Raghavan, E.N. Kaufmann, K. Krien R.A. Naumann, J. Phys. **F: Metal Phys.** 4 (1974) L 80
E.N. Kaufmann, P. Raghavan, R.S. Raghavan, K. Krien E.J. Ansaldo, R.A. Naumann, in: Applications of Ion

- Beams to Metals, Hrsg.: S.T. Pieraux, E.P. Eer Nisse,
F.L. Vook, Plenum Press, New York 1974, S. 379
- 81 S.H. Devare, D.R.S. Somayajulu, H.G. Devare, Hyperf.
Int. 1 (1975) 151
- 82 S.H. Devare, H.G. Devare, International Meeting on
Hyperfine Interactions, Leuven 1975, Contributed
Papers, S. 1
- 83 Y. Beers, Introduction to the Theory of Errors, Addison-
Wesley Publishing Company, Reading, Massachusetts 1958
- 84 H. Bertschat, O. Echt, H. Haas, E. Ivanov, E. Recknagel,
E. Schlodder, B. Spellmeyer, HMI-Jahresbericht 1974,
B-163
- 85 P. Jena, Phys. Rev. Lett. 36 (1976) 418
- 86 Handbook, American Institute of Physics, Mc Graw-Hill
Book Company, New York 1972
- 87 V.N. Panyushkin, L. Bogner, G. Wortmann, Proceedings to
the Int. Conf. on Mößbauer Spektroscopy, Cracow 1975
- 88 Landolt-Börnstein, Zahlenwerte und Funktionen, Bd. II,
Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1971
- 89 J.F. Prince, L.D. Roberts, D.J. Erickson, Phys. Rev. B13
(1976) 24
- 90 J. Bleck, R. Butt, K.H. Lindenberger, W. Ribbe,
W.D. Zeitz, Nucl. Phys. A197 197 (1972) 620
W. Ribbe, Dissertation, FU Berlin 1972
- 91 G. Schatz, M.H. Rafailovich, W.A. Little, G.D. Sprouse,
Phys. Rev. Lett. 35 (1975) 1086
- 92 W. Semmler, Diplomarbeit FU Berlin 1972
- 93 H. Bertschat, O. Echt, H. Haas, F. Pleiter, E. Reck-
nagel, E. Schlodder, B. Spellmeyer, HMI-Jahresbericht
1974, B-163

- 94 Diffusion Data, Bd. 9
- 95 F. Bosch, H. Spehl, Interner Bericht, Universität Freiburg 1973
- 96 H. de Waard, in: Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Hrsg.: E. Karlsson, R. Wäppling, Almqvist & Wiksell International, Stockholm 1974, Invited Paper
- 97 A. Andreeff, H.-J. Hunger, S. Unterricker, in: Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Hrsg.: E. Karlsson, R. Wäppling, Almqvist & Wiksell International, Stockholm 1974, Contributed Papers S. 68
- 98 G. Hohlfelder, F. Dworschak, H. Wollenberger, Verhandl. DPG (VI) 11, M1 (1976)
- 99 O. Echt, H. Haas, E. Ivanov, M. Menningen, H. Rinneberg, private Mitteilung

Lebenslauf

- 1944 am 7.11. in Zieserwitz/Schlesien geboren
Eltern: Emil Semmler
Ursula Semmler, geb. Bettermann
- 1951 - 1959 Besuch der Grundschule in Thüringen
und in der Altmark
- 1959 - 1965 Besuch der Oberschule in Stendal bzw.
des Gymnasiums in Hilchenbach/Siegerland
- 1965 - 1967 Militärdienst
- 1967 Beginn des Studiums an der Freien Universität
Berlin
- 1972 Diplom bei Prof. Dr. Recknagel mit der Arbeit:
"Temperaturabhängige Relaxation ausgerichteter
 ^{109}Cd -Kerne in Silber-Gold-Legierungen"
- ab 1972 Wissenschaftlicher Angestellter am Hahn-Meitner-
Institut
- ab 1973 Wissenschaftlicher Angestellter an der Freien
Universität Berlin, SFB 161
- 1973 Heirat mit Silke Thiemens
- 1974 Geburt des Sohnes Tido

